



Mesures de sections efficaces d'actinides mineurs d'intérêts pour la transmutation

Grégoire Kessedjian

► To cite this version:

Grégoire Kessedjian. Mesures de sections efficaces d'actinides mineurs d'intérêts pour la transmutation. Physique Nucléaire Théorique [nucl-th]. Université Sciences et Technologies - Bordeaux I, 2008. Français. NNT: . tel-00404445

HAL Id: tel-00404445

<https://theses.hal.science/tel-00404445>

Submitted on 16 Jul 2009

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

n° d'ordre : 3672

THESE

présentée à

L'UNIVERSITE BORDEAUX 1

Centre d'Etudes Nucléaires de Bordeaux-Gradignan

ECOLE DOCTORALE DE SCIENCES PHYSIQUES ET DE L'INGENIEUR

par Grégoire Kessedjian

POUR OBTENIR LE GRADE DE

DOCTEUR

SPECIALITE : Noyaux, Atomes, Agrégats, Plasmas

Mesures de sections efficaces d'actinides mineurs d'intérêt pour la transmutation

Soutenue le 19 novembre 2008

Après avis de :

M. Bauge Eric
M. Heuer Daniel

Rapporteur
Rapporteur

Devant la commission d'examen formée de :

M. Moretto P.
M. Bauge E.
M. Heuer D.
M. Flocard H.
M. Haas B.
M. Barreau G.

Professeur, Université Bordeaux 1
Chef de Service au CEA
Directeur de Recherche CNRS
Directeur de Recherche CNRS
Directeur de Recherche CNRS
Directeur de Recherche CNRS

Président
Rapporteur
Rapporteur
Examineur
Examineur
Directeur de thèse

"Pour démystifier les mathématiques, il est bon d'y voir l'invention d'individus "paresseux", désireux d'abrégé par la formalisation l'écriture de leurs raisonnements"

Albert Jacquard
Petite philosophie à l'usage des non-philosophes

Remerciements

Trois années, cela est bien peu dans une vie, mais pourtant ces trois années de thèse ont eu et auront des conséquences inestimables sur *la vie nouvelle*¹ qui s'ouvre à moi. Cette vie à Bordeaux m'a permis de rencontrer via le laboratoire, l'université et la ville elle-même, bien des personnes qui m'auront accompagné dans l'épanouissement que représente la thèse dans le cycle des études. En quelques mots, je voudrais remercier les personnes qui m'ont permis d'être qui je suis aujourd'hui.

En premier lieu, je voudrais remercier B. Haas, directeur du CENBG, pour m'avoir accueilli au sein de son laboratoire et permis de réaliser ce travail de thèse dans les meilleures conditions.

Je tiens à remercier les rapporteurs de cette thèse, Eric Bauge et Daniel Heuer, et l'ensemble des membres du jury d'avoir accepté de juger ce mémoire.

Toute ma reconnaissance va naturellement à mon groupe d'accueil, dirigé par Gérard Barreau, pour m'avoir formé depuis mes premiers pas en master. Pour son accompagnement, son humanité dans l'adversité, je remercie chaleureusement Gérard Barreau qui a su prendre le temps de me former en marge de ses innombrables tâches et responsabilités qui incombent à la vie de DR. Je joins à ces remerciements Mourad Aïche, co-directeur de cette thèse, qui a su prendre du temps pour m'accompagner dans cet apprentissage malgré ses enseignements et ses responsabilités à l'université.

J'ai apprécié la place de choix d'être dans le "bureau du tableau" ; les longues discussions sur les méthodes expérimentales, les observables physiques, les modèles nucléaires m'ont plus d'une fois motivé à l'exigence de cette formation. Le bénéfice de ces discussions, je le dois naturellement à Beatriz Jurado, "membre permanent" de ce bureau qui a su répondre aux innombrables questions qui ont jalonné ces trois années. Merci pour ta rigueur et ton objectivité qui ont toujours prévalu dans les longues discussions, souvent passionnées, contribuant notablement à ce travail. Je voudrais remercier l'ensemble des membres du groupe ACEN, Gérard Barreau, Beatriz Jurado, Mourad Aïche, Serge Czajkowski, Bernard Haas, Danielle Dassié, les anciens membres de ce groupe, Adrien Bidaud, Ludovic Mathieu et Bari Osmanov, et le nouveau venu, Guillaume Boutoux, qui chacun à leur manière ont contribué notablement à cette formation. Qu'ils y trouvent ici l'expression de ma profonde reconnaissance.

A l'ensemble des membres du laboratoire, merci ; merci pour votre accueil, merci pour l'ensemble des services rendus professionnels ou personnels. Cette vie au laboratoire n'aurait pas été la même sans les innombrables discussions avec Gérard Brut au café du matin. Oui Gérard, La Brede est bien la capitale, si ce n'est de la France, soyons en sûr, au moins de l'Aquitaine. Merci au bureau d'étude, à l'atelier, aux services instrumentation et accélérateur pour avoir toujours répondu avec sympathie à nos attentes. La qualité d'une expérience commence par la qualité du dispositif expérimental ; vous portez à nos côtés les réussites de ce travail.

¹Orhan Pamuk

Plus particulièrement, je voudrais remercier Adrien pour ces longues discussions sur les covariances au Rio Pongo pendant ma première année de thèse. Assurément ça passe beaucoup mieux devant un mafé et une table bien garnie. A Frédéric, merci de m'avoir écouté diverger sur (dans ?) l'erreur. Sans le savoir, tu as été la jauge de cette partie qui a pris des dimensions insoupçonnées. Merci Ludovic pour m'avoir accompagné pendant les deux premières années, il est clair que tu as largement contribué à ma formation générale sur la thématique (mais non, je ne parlerai pas du réchauffement climatique dans ce mémoire...). A Michaël Bender, qui a su prendre le temps de répondre à mes questions et me guider vers la "décomposition singulière", qu'il soit vivement remercié.

Je suis reconnaissant à l'ensemble des personnes rencontrées au gré des expériences à l'IPNO et l'IRMM Geel, ou des écoles d'été et autres rencontres jeunes chercheurs. De peur d'en oublier, je n'ose citer de noms, mais ces rencontres resteront pour moi parmi les moments les plus marquants de ces trois années.

A mes amis : je tiens à vous remercier pour ces quatre excellentes années passées à Bordeaux ; merci à Beatriz, Medhi, Aude, Mathias, Barbara, Jérôme (sénior, la vie est dure), Jérôme Jr, Asun, Richard, Veronika, Guillaume (D) (et Ida), Guillaume (B), Pauline, Frédéric, Nelly, Marion, Joao, Laurent, Emmanuel, Adrien, Véronique, Ludovic et tous ceux que j'oublie honteusement. Merci de m'avoir accompagné dans ces discussions passionnées contribuant à mon épanouissement scientifique et personnel.

Il ne pourrait être oublié le rôle de ma famille dans le cheminement de ces études ; pour son indéfectible soutien je la remercie grandement.

Résumé :

Les réacteurs actuels produisent deux types de déchets dont la gestion et le devenir soulèvent des problèmes. Il s'agit d'abord de certains produits de fission et de noyaux lourds (isotopes de l'Américium et du Curium) au-delà de l'uranium appelés actinides mineurs. Deux options sont envisagées : le stockage en site géologique profond et/ou l'incinération de ces déchets dans un flux de neutrons rapides, c'est-à-dire, la transmutation par fission. Ces études font appel à de nombreuses données neutroniques. Malheureusement, les bases de données présentent encore de nombreuses insuffisances pour parvenir à des résultats fiables. L'objectif de ce travail est ici d'actualiser des données nucléaires et de les compléter. Nous avons ainsi mesuré la section efficace de fission de l' ^{243}Am (7370 ans) en référence à la diffusion élastique (n,p) afin de fournir des données indépendantes des mesures existantes dans la gamme des neutrons rapides (1 - 8 MeV). La réaction $^{243}\text{Am}(n, f)$ a été analysée en utilisant un modèle statistique décrivant les voies de désexcitation du noyau composé d' ^{244}Am . Ainsi les sections efficaces de capture radiative (n, γ) et de diffusion inélastique (n, n') ont pu être évaluées.

La mesure directe des sections efficaces neutroniques d'actinides mineurs constitue très souvent un véritable défi compte tenu de la forte activité des actinides mineurs. Pour cela, une méthode indirecte a été développée utilisant les réactions de transfert dans le but d'étudier certains isotopes du curium. Les réactions $^{243}\text{Am}(^3\text{He}, d)^{244}\text{Cm}$, $^{243}\text{Am}(^3\text{He}, t)^{243}\text{Cm}$ et $^{243}\text{Am}(^3\text{He}, \alpha)^{242}\text{Am}$ nous ont permis de mesurer les probabilités de fission des noyaux de $^{243,244}\text{Cm}$ et de l' ^{242}Am . Les sections efficaces de fission des curiums $^{242,243}\text{Cm}$ (162,9 j, 28,5 ans) et de l'américium ^{241}Am sont obtenues en multipliant ces probabilités par les sections efficaces calculées de formation des noyaux composés. Pour chaque mesure, une évaluation précise des erreurs a été réalisée à travers une étude des variances-covariances des résultats présentés. Pour les mesures de la réaction $^{243}\text{Am}(n, f)$, une analyse des corrélations d'erreurs a permis d'interpréter la portée de ces mesures au sein des mesures existantes.

Mots clés : neutrons rapides, section efficace, fission, diffusion élastique (n,p), réactions de transfert, probabilité de fission, américium, curium, modèle statistique, $^{241,243}\text{Am}$, $^{242,243}\text{Cm}$, variance, covariance, corrélation d'erreurs.

Abstract :

The existing reactors produce two kinds of nuclear waste : the fission products and heavy nuclei beyond uranium called minor actinides (Americium and Curium isotopes). Two options are considered : storage in deep geological site and/or transmutation by fast neutron induced fission. These studies involve many neutron data. Unfortunately, these data bases have still many shortcomings to achieve reliable results. The aim of these measurements is to update nuclear data and complement them.

We have measured the fission cross section of ^{243}Am (7370y) in reference to the (n,p) elastic scattering to provide new data in a range of fast neutrons (1 - 8 MeV). A statistical model has been developed to describe the reaction $^{243}\text{Am}(n, f)$. Moreover, the cross sections from the following reactions have been extracted from these calculations : inelastic scattering $^{243}\text{Am}(n, n')$ and radiative capture $^{243}\text{Am}(n, \gamma)$ cross sections.

The direct measurements of neutron cross sections are often a challenge considering the short half-lives of minor actinides. To overcome this problem, a surrogate method using transfer reactions has been used to study few isotopes of curium. The reactions $^{243}\text{Am}(^3\text{He}, d)^{244}\text{Cm}$, $^{243}\text{Am}(^3\text{He}, t)^{243}\text{Cm}$ and $^{243}\text{Am}(^3\text{He}, \alpha)^{242}\text{Am}$ allowed to measure the fission probabilities of $^{243,244}\text{Cm}$ and ^{242}Am . The fission cross sections of $^{242,243}\text{Cm}$ (162,9d, 28,5y) and ^{241}Am (431y) have been obtained by multiplying these fission probabilities by the calculated compound nuclear neutron cross section relative to each channel. For each measurement, an accurate assessment of the errors was realized through variance-covariance studies. For measurements of the reaction $^{243}\text{Am}(n, f)$, the analysis of error correlations allowed to interpret the scope of these measures within the existing measurements.

key words : fast neutrons , cross section, fission, elastic scattering (n,p), surrogate method, transfer reaction, fission probability, Americium, Curium, statistical model, $^{241,243}\text{Am}$, $^{242,243}\text{Cm}$, variance, covariance, correlations of errors.

Table des matières

Introduction	5
1 Le contexte des actinides mineurs	7
1.1 Les déchets du parc électronucléaire français	9
1.1.1 Du chargement à l'inventaire d'un réacteur REP.	9
1.1.2 Radioactivité - Radiotoxicité - Evolution des radionucléides dans le temps	12
1.1.3 Définition des déchets - Classification	13
1.2 La gestion des déchets	17
1.2.1 Loi "Bataille" - Loi cadre de la recherche de 1991	17
1.2.2 La transmutation	17
1.2.3 Entreposage en surface et stockage géologique	19
1.3 Données nucléaires pour la transmutation	20
2 Objectifs et méthodes	25
2.1 Mesure directe d'une section efficace de fission : $^{243}\text{Am}(n, f)$	27
2.1.1 Les techniques de mesure	27
2.1.2 L'état des lieux.	31
2.1.3 Objectifs et choix de la méthode	34
2.1.4 Détermination de la section efficace de fission.	39
2.2 Les Curiums - méthode indirecte.	41
2.2.1 Etat des lieux.	41
2.2.1.a Mesures $^{242}\text{Cm}(n, f)$	41
2.2.1.b Mesures $^{243}\text{Cm}(n, f)$	42
2.2.1.c Mesures $^{244}\text{Cm}(n, f)$	43
2.2.1.d Mesures par réactions de transfert	44
2.2.2 Objectif - Principe de la méthode de substitution	44
2.2.3 Les méthodes de substitutions existantes	46
2.2.3.a Réactions usuelles	46
2.2.3.b Les méthodes d'analyse.	47

2.2.3.b.1	Mesure "absolue"	47
2.2.3.b.2	Mesure relative	48
2.2.4	Les limites de la méthode de substitution	49
2.3	Principe de notre méthode	54
3	Mesure de la section efficace de fission de ^{243}Am.	59
3.1	Dispositif expérimental.	60
3.1.1	Production de neutrons quasi-monoénergétiques	60
3.1.2	Les cibles d' ^{243}Am	64
3.1.3	Le dispositif expérimental	65
3.1.3.a	Les détecteurs de fragments de fission	66
3.1.3.b	Détection des neutrons par les protons de recul	66
3.1.4	Caractéristiques techniques, géométriques et radiologiques	67
3.2	Analyse des données	70
3.2.1	Les fragments de fission	70
3.2.2	Le flux de neutrons	72
3.2.2.a	Les protons de recul	72
3.2.2.b	Simulation	74
3.2.3	Détermination de la section efficace de fission	81
3.3	Analyse des erreurs	83
3.3.1	Formulation générale de la variance d'une observable mesurée	83
3.3.2	Formulation générale de la covariance de deux observables mesurées	85
3.3.3	Erreur de la section efficace de fission	86
3.3.4	Erreurs statistiques des événements fissions et protons - Sensibilités	89
3.3.5	Erreurs systématiques de la section efficace de diffusion (n,p)	92
3.3.6	Corrélations des erreurs d'une série de mesures	93
3.4	Mesures complémentaires	97
3.5	Présentation des résultats	100
3.5.1	Mesures en référence à la diffusion (n,p)	100
3.5.2	Covariances des mesures de section efficace de fission	107
3.5.3	Mesures en référence aux sections efficaces de fission des $^{235,238}\text{U}$	116
3.6	Evaluation de ^{243}Am	120
3.6.1	Section efficace de formation du noyau composé	120
3.6.2	Probabilité de désexcitation	121
3.6.3	Densité de niveaux	123
3.6.4	Résultats	127

4	Sections efficaces de fission des $^{242,243}\text{Cm}$	133
4.1	Dispositif expérimental	133
4.1.1	La cible ^{243}Am	133
4.1.2	La chambre de réactions	135
4.1.2.a	Le faisceau et la chambre	135
4.1.2.b	Détecteurs de particules légères et des fragments de fission . . .	136
4.1.2.c	Acquisition des données	137
4.2	Analyse de données	139
4.2.1	Les différentes voies de réactions	139
4.2.1.a	Etalonnage des télescopes	139
4.2.1.b	Identification des voies de réactions et spectres de particules associés	141
4.2.2	Analyse des spectres de particules légères	145
4.2.3	Efficacité de détection des fragments de fission	150
4.3	Présentation des résultats	153
4.3.1	Probabilité de fission	153
4.3.2	Détermination des sections efficaces de fission	159
	Conclusion	165
5	Annexes	169
	Annexe 1	171
5.1	Radiotoxicité des principaux actinides produits	171
	Annexe 2	173
5.2	Erreur de la section efficace de fission moyenne de l' ^{243}Am	173
5.2.1	Section efficace de fission moyenne $\langle \sigma_{(n,f)} \rangle$	173
5.2.2	Erreur de la moyenne du taux de fission normalisé $\langle F/\Omega \rangle$	174
5.2.3	Erreur de la section efficace de fission moyenne $\langle \sigma_{(n,f)} \rangle$	176
5.3	Corrélations d'erreurs de mesures moyennes	179
5.3.1	Corrélations d'erreurs de mesures moyennes d'une même série	180
5.3.2	Corrélations d'erreurs de mesures moyennes de deux séries différentes . . .	185
	Annexe 3	187
5.4	Analyse des erreurs des probabilités de fission des $^{243,244}\text{Cm}$	187
5.4.1	Variances-covariances d'une mesure d'une probabilité de fission	188
5.4.2	Variances-covariances de la mesure d'une probabilité de fission moyenne .	190

Annexe 4	195
5.5 Tableau des mesures de la réaction $^{243}\text{Cm}(n, f)$	195
5.6 Tableau des mesures de la réaction $^{242}\text{Cm}(n, f)$	197
5.7 Tableau des mesures de la réaction $^{241}\text{Am}(n, f)$	198
Bibliographie	200
Table des figures	205
Liste des tableaux	209

Introduction

Depuis les années 70, l'électricité produite en France est en grande partie d'origine nucléaire. Chaque année, près de 110 tonnes de combustible irradié sont retirées des réacteurs pour être en partie traitées par les usines de la Hague. Cette phase du retraitement donne lieu à une séparation des déchets ultimes de cette filière (produits de fission et Actinides mineurs) dans le but d'extraire et valoriser les actinides majeurs que sont les $^{235,238}\text{U}$ et le ^{239}Pu . Les déchets nucléaires ultimes sont actuellement stockés en attente de solutions définitives.

Depuis 1991, une loi cadre de la recherche en France, dite loi Bataille, demande aux organismes publics de recherche de trouver des solutions adaptées au devenir des déchets radioactifs. Les axes de recherches sont les suivants :

- Axe 1 - séparation et transmutation ;
- Axe 2 - stockage dans les formations géologiques profondes ;
- Axe 3 - conditionnement et entreposage de longue durée en surface.

Un premier bilan des nombreuses études sur l'axe 1 a montré la faisabilité scientifique de la transmutation des produits de fission à vie longue (^{99}Tc , ^{135}Cs , ^{129}I) et des actinides mineurs. Néanmoins et compte tenu des techniques industrielles envisageables, il a été proposé de stocker définitivement les produits de fission après séparation poussée ; seule la transmutation des actinides mineurs est alors envisagée.

Ce travail s'inscrit dans le cadre de la transmutation des actinides mineurs qui dominant la radiotoxicité des déchets actuels au-delà de quelques centaines d'années. Pour ces noyaux lourds, leur transmutation passe par leur incinération par fission. Cette incinération est favorisée dans un spectre de neutrons rapides (quelques centaines de keV) où l'on minimise la réaction de capture par rapport à celle de fission. La conception d'un réacteur incinérateur et son rendement reposent sur des calculs de neutronique complexes qui font appel aux bases de données nucléaires. Pour les isotopes du Curium et de l'Américium étudiés dans ce travail, ces données nucléaires et en particulier les sections efficaces de fission sont encore mal connues. Le but de ce mémoire est de compléter ces bases de données.

Le premier chapitre rappellera les raisons pour lesquelles il est nécessaire de réaliser de nouvelles mesures sur les actinides mineurs dans le but d'incinération de ces déchets. Nous

replacerons cette étude dans le contexte énergétique français et la loi cadre de la recherche sur la gestion des déchets nucléaires de 1991.

Dans un second temps, nous présenterons les objectifs de ce travail compte tenu de l'importance de certains noyaux dans le cycle du combustible et des ambiguïtés existantes sur la définition de leurs sections efficaces. La définition des objectifs nous a conduits à choisir deux méthodes différentes dans le but de déterminer les sections efficaces de fission de l' ^{243}Am et des ^{242}Cm et ^{243}Cm . La première méthode consiste à placer un échantillon dans un flux de neutrons pour en étudier ses propriétés ; la seconde méthode permet de réaliser des mesures indirectes de sections efficaces. Le choix de cette méthode repose sur l'indisponibilité de cibles de curium. L'objectif est alors de former les noyaux que l'on souhaite étudier à partir d'une cible manipulable. Nous présenterons et discuterons de chacune des méthodes de mesures au regard des expériences passées.

Le chapitre trois décrit l'analyse des mesures réalisées sur l' ^{243}Am par irradiation de neutrons. Dans ce chapitre, nous détaillerons l'analyse des erreurs sur les mesures dans le but d'explicitier la méthode de comparaison des différentes mesures existantes. Ces mesures seront ensuite évaluées pour fournir les principales sections efficaces de ce noyau dans le domaine des neutrons rapides.

Le chapitre quatre présente les mesures réalisées sur les curiums par une méthode indirecte. Nous discuterons de la sensibilité de cette méthode aux caractéristiques des cibles utilisées. Une fois encore l'analyse des erreurs et l'indépendance de cette méthode par rapport aux techniques habituelles définiront la portée de ce travail pour des noyaux où peu de mesures sont disponibles dans les bibliothèques de données.

Chapitre 1

Le contexte des actinides mineurs

Suite aux deux chocs pétroliers des années 70, la France a choisi de développer la production d'énergie par des centrales nucléaires pour s'assurer une autonomie énergétique. Aujourd'hui, cette source d'énergie représente près de 77% de l'électricité produite en France, à côté de 12% d'électricité renouvelable et $\sim 11\%$ produits par la combustion d'hydrocarbure. La retombée des cours du pétrole dans les années 80 et la prise de conscience par le grand public des conséquences possibles liées à un accident dans une installation nucléaire, ont conduit plusieurs pays à stabiliser leurs moyens de production d'électricité d'origine nucléaire, voire à les démanteler au profit de sources d'énergies dites plus sûres, essentiellement basées sur la combustion d'hydrocarbure.

Ces dernières années, deux faits ont marqué la nécessité d'étudier cette source d'énergie : le premier est lié à l'activité des centrales actuelles. Les déchets emmagasinés pendant trente ans d'activité posent des problèmes de gestion dans le temps mais aussi des questions éthiques quant au legs de déchets aux générations suivantes. Le second fait important correspond à la question de l'environnement : comment produire l'énergie "nécessaire" à notre société sans dégrader l'environnement ? Mais la question doit aussi s'entendre de la façon suivante : peut-on continuer de gaspiller l'énergie dans les pays développés alors même que la moitié de l'humanité n'a pas accès à l'électricité ? Cette question s'accompagne aussi en occident du devenir de ces sociétés énergivores et de la généralisation de ce mode de pensée à l'ensemble des populations. En soit, cette question perpétuelle du devenir est beaucoup plus générale que le problème des déchets nucléaires à long terme ou le manque d'énergie. La seule question que l'on doive se poser porte sur le droit de l'humanité à transformer, dégrader et piller son environnement. La réponse à cette question n'est pas tant écrite dans l'avenir que dans le passé. L'Homme depuis qu'il existe, transforme son environnement de manière irréversible. Les transformations les plus manifestes sont données par la modification du paysage par l'agriculture, l'urbanisme ou l'industrialisation. Ce dernier point est certainement l'action ayant le plus de répercussion pour les générations à venir. Croire que la pollution radiologique des déchets nucléaires est la pire des situations, c'est négliger l'action de la pollution chimique qui accompagne l'industrialisation (production d'éner-

gie nucléaire comprise). Il est évident que nos générations vont léguer un héritage plus inquiétant que les déchets radioactifs, elles lèguent une modification irréversible du biotope au profit d'une société énergétiquement boulimique, par nature éphémère. En France, sur les 5400 kg de déchets domestiques et industriels produits par an et par habitant, les déchets toxiques représentent 70 kg dont 1 kg de déchets radioactifs [Bi06]. Toutefois, cette faible proportion n'élude pas le fait que la gestion de ces déchets doit être étudiée pour éviter les risques de pollutions radiologiques.

Dans ce chapitre, nous présenterons la gestion actuelle des déchets nucléaires produits par les centrales et les études menées en France ces dernières années sur la faisabilité des techniques envisagées. Nous concluons sur la nécessité de nouvelles études dans la région des actinides pour prévoir au mieux la gestion des déchets.

1.1 Les déchets du parc électronucléaire français

1.1.1 Du chargement à l'inventaire d'un réacteur REP.

La production d'énergie nucléaire repose actuellement sur les propriétés de l' ^{235}U , seul noyau fissile présent sur terre. Un noyau est dit fissile lorsqu'il a la propriété de fissionner par interaction avec des neutrons de basse énergie (neutrons thermiques 25 meV). A l'état naturel seuls trois isotopes de l'uranium existent : l' ^{238}U ($T_{1/2} = 4,46.10^9$ ans) est l'isotope majoritaire représentant 99,27% de l'uranium naturel ; l' ^{235}U ($T_{1/2} = 7,04.10^8$ ans) est présent dans la nature à hauteur de 0,72% ; le dernier isotope présent sur terre est l' ^{234}U ($T_{1/2} = 2,45.10^5$ ans) avec une abondance isotopique de 0,005%.

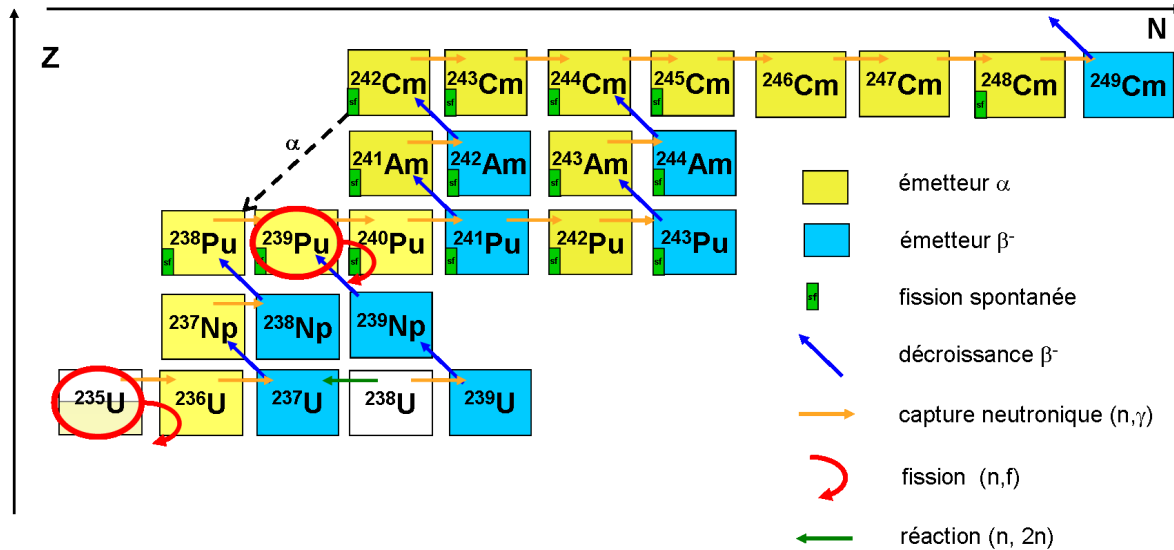


FIG. 1.1 – Carte des isotopes produits dans un réacteur dans la région des actinides.

L' ^{238}U a la caractéristique de capturer facilement un neutron pour former le ^{239}Pu après deux décroissances β^- . Cet isotope du plutonium est fissile comme l' ^{235}U . L' ^{238}U est qualifié de fertile en raison de sa capacité à générer un nouvel isotope fissile susceptible de produire de l'énergie. Dans un réacteur thermique, le ^{239}Pu réalise une capture neutronique¹ dans ~37% des cas (contre ~ 18% pour l' ^{235}U) [Va06]. Cet effet conduit naturellement à la formation

¹La probabilité P_{A+1X} de former l'isotope ^{A+1}X par une capture neutronique sur un noyau AX est donnée par la relation $P_{A+1X} = \frac{\alpha}{1+\alpha}$ où le terme α correspond au rapport du taux de capture sur le taux de fission du noyau étudié AX ; la probabilité de disparition par fission du noyau AX est donnée par la relation $P_{f-AX} = \frac{1}{1+\alpha}$ (ces deux relations sont vraies si l'on suppose que les noyaux ne décroissent pas par désintégration radioactive).

d'isotopes de plutonium plus lourds tels que les $^{241,243}\text{Pu}$. Ces isotopes de plutonium vont décroître exclusivement par radioactivité β^- pour former respectivement les américiums $^{241,243}\text{Am}$ (fig.1.1). Ainsi, par captures neutroniques successives et décroissances β^- , le spectre des isotopes du combustible va s'enrichir en éléments nouveaux. Par ce même processus, les noyaux du curium (Cm) vont apparaître : les isotopes majoritaires sont le ^{244}Cm (90%) et le ^{245}Cm (8%) [DEN08-2]. Tous ces isotopes de la famille des actinides produits dans les réacteurs sont appelés actinides mineurs (AM) du cycle uranium - plutonium. A l'inverse, les actinides introduits dans le coeur du réacteur ($^{235,238}\text{U}$) et le plutonium produit sont qualifiés de majeurs en raison des quantités présentes en fin de cycle et de l'intérêt de ces isotopes dans la filière énergétique. 0.5cm

Isotope	Période $T_{1/2}$	Chargement		Déchargement	
	(ans)	(kg/TWhe)	(kg/an)	(kg/TWhe)	(kg/an)
	Actinides majeurs				
^{235}U	7,08.10 ⁸	136	751	40	221
^{236}U	2,34.10 ⁷			16	88
^{238}U	4,47.10 ⁹	3757	20734	3661	20 204
^{238}Pu	87,40			0,6	
^{239}Pu	2,44.10 ⁴			22,3	
^{240}Pu	6 58			8,6	
^{241}Pu	14,35			4,6	
^{242}Pu	3,87.10 ⁵			1,9	
	Actinides Mineurs (AM)				
^{237}Np	2,14.10 ⁶			1,6	8,8
^{241}Am	432,7			0,8	
^{243}Am	7370			0,4	
^{243}Cm	28,5			0	0
^{244}Cm	18,1			0,09	0,5
^{245}Cm	8500			0,01	0,06
	Produits de Fission (PF)				
^{90}Sr	28			1,9	10,5
^{137}Cs	30			4,4	24,3
^{93}Zr	1,5.10 ⁶			2,8	15,5
^{99}Tc	2,1.10 ⁵			3,2	17,7
^{107}Pd	6,5.10 ⁶			0,8	4,4
^{129}I	1,6.10 ⁷			0,7	3,9
^{135}Cs	2.10 ⁶			1,4	7,7

TAB. 1.1 – Composition des principaux isotopes du combustible avant et après irradiation de combustible UOX (enrichi en ^{235}U à 3,5%) dans un réacteur REP de 900MWe, pour un taux de combustion (burn-up) de 33GWj/t [Fi98] .

Le parc électronucléaire en France est constitué de 58 réacteurs à eau pressurisée (REP) d'une puissance comprise entre 900 et 1450 MWe suivant la date de construction. Le combustible initial est l'oxyde d'uranium (UOX) enrichi en ^{235}U à hauteur de 3,7%. Pour une énergie de 1GWe.an, ce type de réacteur consomme 27 t d'uranium enrichi nécessitant l'extraction de 180 t d'uranium naturel. Pour un réacteur REP de 1000MWe chargé de combustible UOX produisant 6TWhe/an, l'inventaire du combustible utilisé peut se répartir en quatre groupes [DEN08-1] :

- 20 t d'uranium contenant 0,98% d' ^{235}U ;
- 200 kg de plutonium ;
- 21 kg d'actinides mineurs (Np, Am, Cm) ;
- 760 kg de produits de fission.

Les deux premiers groupes constituent des déchets valorisables dans un processus de recyclage du combustible utilisé. Les actinides mineurs (AM) et les produits de fission (PF) sont considérés comme les déchets du cycle uranium.

bilan (kg/TWhe)	UOX 55GWj/t	MOX 55GWj/t
Pu	+26	-53
Np	+1,8	-
Am	+1,5	+15
Cm	+0,3	+4
rendement isoto- pique Pu (%)	UOX 55GWj/t	MOX 55GWj/t
^{238}Pu	3,5	5,1
^{239}Pu	51,0	41,5
^{240}Pu	24,8	29,0
^{241}Pu	12,1	12,8
^{242}Pu	8,6	11,6
Pu fissile	62,1	54,3

TAB. 1.2 – Inventaire en actinides pour les combustibles UOX et MOX normalisé à une même puissance de fonctionnement (55GWj/t) après un refroidissement de 5 ans [DEN08-1].

Parmi les isotopes de plutonium produits, le ^{239}Pu est majoritaire ($\sim 60\%$ - tab.1.1). Ce noyau fissile est recyclé pour produire un nouveau combustible nommé Mixed OXide (MOX) : l'oxyde d'uranium est enrichi en plutonium à hauteur de 7%. En France, ce nouveau combustible alimente 20 REP de 900 MWe à hauteur de 30%. L'énergie produite par ce combustible recyclé représente 8% de l'énergie électrique produite en France [Da06]. Toutefois, l'introduction de plu-

tonium en quantité non-négligeable dans le coeur, augmente les rendements de production des actinides mineurs : les quantités d'américium et de curium sont multipliées respectivement par 10 et 13 par rapport à un réacteur REP chargé de combustible UOX (tab.1.2). De plus, les rendements isotopiques du plutonium montrent une diminution de la proportion de ^{239}Pu fissile au profit d'isotopes du plutonium non-fissile. L'utilisation de combustible MOX dans des réacteurs thermiques dégrade la qualité isotopique du plutonium (tab.1.2). Le recyclage du combustible en REP ne semble donc pas indiqué.

1.1.2 Radioactivité - Radiotoxicité - Evolution des radionucléides dans le temps

La notion des déchets nucléaires est relative à la politique de gestion du combustible utilisé. Pour les pays ayant choisi de ne pas retraiter ce combustible utilisé (Etats-Unis, Suède...), les déchets représentent l'ensemble des barres de combustible avec leurs gaines. D'autres pays (France, Japon, Suisse, Australie, Allemagne, Russie...) ont choisi de retraiter leurs combustibles utilisés pour diminuer les volumes des déchets ultimes. Quelle que soit la solution adoptée, l'industrie doit gérer les éléments radioactifs produits pendant la période où ils restent dangereux pour la biosphère. La grandeur d'intérêt pour décrire l'impact de la radioactivité sur l'environnement est appelée la radiotoxicité. Cette quantité est fonction de l'activité des isotopes considérés, du type de radioactivité et des caractéristiques chimiques des éléments (cf. annexe1). La figure (1.2) présente la radiotoxicité des noyaux produits en fonction du temps en référence à la radiotoxicité de l'uranium sorti des mines. L'élément le plus radiotoxique produit est le plutonium. Sa radiotoxicité devient inférieure à l'uranium naturel après plus de 100 000 ans. Les éléments les plus radiotoxiques qui suivent sont les actinides mineurs pour lesquels une période de 10 000 ans est nécessaire avant de retrouver la valeur de référence. Enfin, les produits de fission vont décroître le plus rapidement en raison du type de radioactivité (β^-) et des périodes de décroissance relativement courtes à l'exception de quelques radionucléides (cf tab.1.1).

Pour les pays ayant choisi de retraiter leurs déchets en vue de recycler le plutonium, cet élément sort de l'inventaire des déchets nucléaires au profit des matières dites valorisables au même titre que l' ^{238}U majoritaire et de l' ^{235}U présent dans le combustible utilisé (0,9%). Toutefois, cette classification des déchets ne diminue pas la radiotoxicité produite qu'il faut gérer quelles que soient les décisions politiques prises.

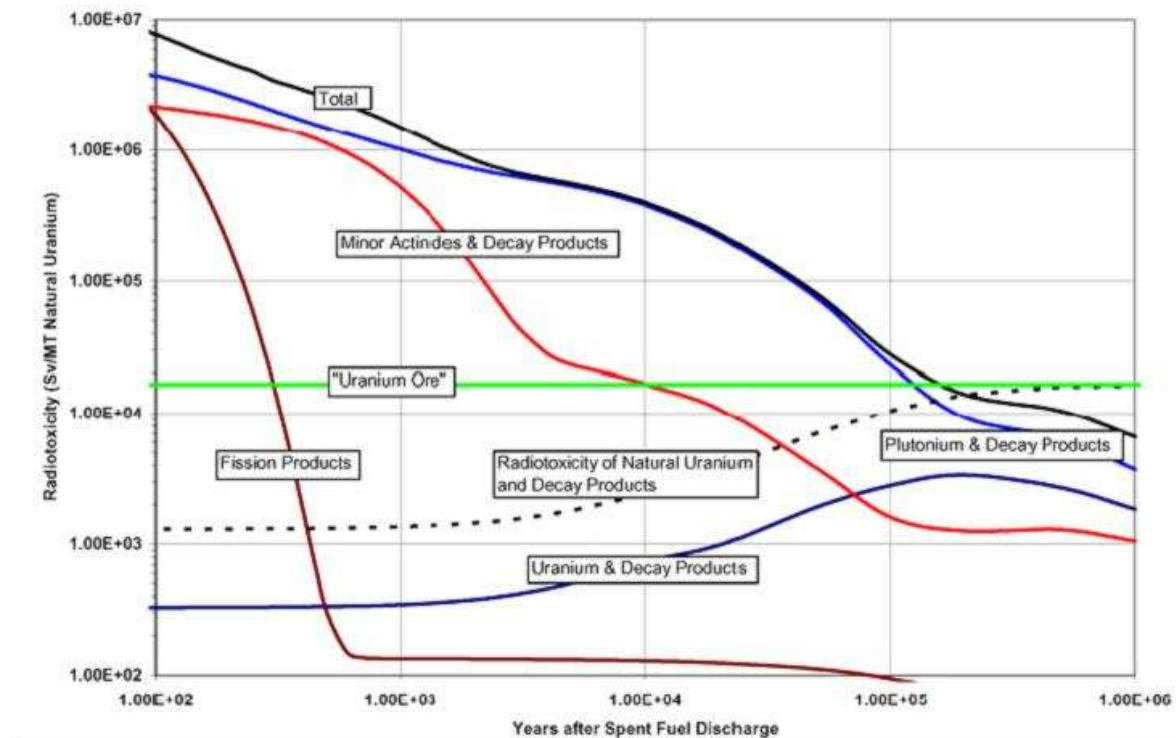


FIG. 1.2 – *Evolution de la radiotoxicité du combustible usé par groupes de déchets nucléaires [NEA06]. La référence est fixée par la radiotoxicité associée à la fabrication d'une tonne d'uranium enrichi.*

1.1.3 Définition des déchets - Classification

La notion de déchets radioactifs est définie par l'Agence Internationale de l'Energie Atomique de la façon suivante [Bi06] :

"Toute matière pour laquelle aucune utilisation n'est prévue et qui contient des radionucléides en concentration supérieure aux valeurs que les autorités compétentes considèrent comme admissibles dans des matériaux propres à une utilisation sans contrôle."

Les déchets sont répartis selon leur activité totale et la présence de produits radioactifs de longue période ($T_{1/2} > 30$ ans). Le tableau (tab.1.3) présente l'origine des déchets nucléaires en France et les traitements effectifs ou à l'étude.

Au 31 dec. 2002	Description	Origine	Destination	Activité massique (Bq/g) durée de vie (ans)
Haute Activité - Vie Longue (HA-VL)	Produits de fission et actinides mineurs vitrifiés	Retraitement	A l'étude (loi du 30 dec. 1991)	$A_m > 10^{10}$ Bq/g
		Recherche		$T_{1/2} > 30$ ans
Moyenne Activité - Vie Longue (MA-VL)	Graines de combustible	Retraitement	A l'étude	$A_m > 10^5$ Bq/g
	Boues de traitement d'effluents bitumées Déchets solides cimentés	Recherche		$A_m < 10^8$ Bq/g $T_{1/2} > 30$ ans
Faible Activité - Vie Longue (FA-VL)	Déchets graphités (centrale UNGG)	Démantèlement	En cours de réalisation pour une mise en service en 2010	$100 < A_m < 10^5$ Bq/g
	Déchets radioactifs	Déchets de procédés d'assainissement		$T_{1/2} > 30$ ans
Faible ou Moyenne Activité à vie courte (FMA-VC)	Déchets solides, boues cimentées, résines	Exploitation, maintenance, démantèlement d'installations de recherche ou industrielles	Centre de stockage de la Manche (fermé en 1994)	$100 < A_m < 10^8$ Bq/g
			Centre de stockage de l'Aude (ouvert en 1992)	$T_{1/2} < 30$ ans
Très Faible Activité (TFA)	Gravats, ferrailles	Démantèlements	Centre de stockage de Morcilliers dans l'Aube	$A_m < 100$ Bq/g
	Déchets industriels spéciaux			$T_{1/2} < 30$ ans

TAB. 1.3 – Origines et destinations des déchets nucléaires en France [Ba06]

Gestion actuelle du combustible avec retraitement partiel				
	Combustible UOX			Combustible MOX
Réacteurs REP	38 REP chargés à 100% & 20 REP chargés à 70% (900MWe)			20 réacteurs 900MWe chargés à 30%
Retraitement	80% retraité (pour le MOX)		20% stocké en l'état	100% stocké en l'état
Produits	Pu et U séparés	PF et AM vi tri fiés	Combustible utilisé en attente de retraitement	
Valorisation / Déchets	100% Pu & 30% U ré-enrichi	Déchets actuels en attente de solution(s) définitive(s)		
Bilan actuel du retraitement				
Actinides Mineurs	35% vitrifiés provenant de l'UOX - 65% entreposés (UOX et MOX non-retraités)			
Produits de fission	70% vitrifiés provenant de l'UOX - 30% entreposés (UOX et MOX non-retraités)			

TAB. 1.4 – Gestion du combustible utilisé - retraitement partiel en attente de solutions définitives [Da06].

Actuellement, 80% du combustible UOX utilisé est traité pour recycler le plutonium destiné au combustible MOX (tab.1.4). Les produits de fission et les actinides mineurs sont isolés (PUREX) et vitrifiés dans les usines de la Hague. Ces déchets vitrifiés de hautes activités sont stockés en attente d'une solution définitive, mais ils ne pourront pas être incinérés en l'état. Malgré des études montrant la faisabilité de la dé-vitrification des déchets, il est probable que le coût engendré par une telle opération nécessite un stockage définitif en surface ou en profondeur dans des sites spécifiques. De plus, la plus grande partie, voire la totalité, des produits de fission sont à gérer sur plusieurs décennies. Il apparaît donc la nécessité de prévoir des sites de gestion des déchets de haute radioactivité (à moyen et long terme) quelle que soit la solution adoptée pour les actinides mineurs et les produits de fission à vie longue.

Au 31 dec. 2002	Volume	Volume en % du total des déchets	Activité en % de l'activité totale des déchets
Haute Activité - Vie Longue (HA-VL)	1 639 m^3	0.2%	96.05%
Moyenne Activité - Vie Longue (MA-VL)	45 359 m^3	4.6%	3.87%
Faible Activité - Vie Longue (FA-VL)	44 559 m^3	4.5%	0.01%
Faible ou Moyenne Activité à vie courte (FMA-VC)	778 322 m^3	79.6%	0.07%
Très Faible Activité (TFA)	108 219 m^3	11.1%	~ 0

TAB. 1.5 – *Inventaire des déchets radioactifs en France au 31 décembre 2002, quelles que soient leurs origines [Ba06].*

Suivant la répartition des déchets précédemment citée (tab.1.3), le tableau (tab.1.5) présente le volume des déchets accumulés en France jusqu'en 2002. Le combustible usé non-retraité entre naturellement dans le groupe des Hautes Activités à Vies Longues (HAVL). Ceci a pour conséquence d'augmenter considérablement le volume des déchets à surveiller sur le long terme. Actuellement, pour une tonne de combustible irradié, le volume de déchets non-retraités représente près de 2 m^3 , contre un volume inférieur à 0,5 m^3 après retraitement. En France, le volume cumulé des déchets nucléaires est estimé à 6000 m^3 pour la période 1998-2020. De plus, il faut ajouter que les déchets de hautes activités (HA) représentent $\sim 98\%$ de l'activité totale mais seulement 1% du volume.

1.2 La gestion des déchets

1.2.1 Loi "Bataille" - Loi cadre de la recherche de 1991

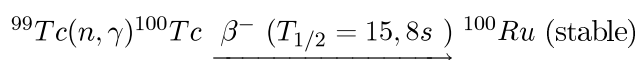
La loi du 30 décembre 1991 demande aux organismes de recherche de travailler sur la gestion durable des déchets radioactifs selon trois axes [Ba06] :

- Axe 1 - la recherche de solutions permettant la séparation et la transmutation des éléments radioactifs à vie longue présents dans ces déchets ;
- Axe 2 - l'étude des possibilités de stockage réversible ou irréversible dans les formations géologiques profondes, notamment grâce à la réalisation de laboratoires souterrains ;
- Axe 3 - l'étude de procédés de conditionnement et d'entreposage de longue durée en surface de ces déchets.

Les différents axes de recherche ont été confiés à trois organismes : les axes 1 et 3 ont été confiés au CEA ; l'Agence pour la gestion des déchets nucléaires (Andra) est chargée de mener les recherches sur l'axe 2. Le CNRS et les universités sont associés au CEA au niveau de l'axe 1 dans le but d'apporter des solutions innovantes pour la transmutation des déchets et la production d'énergie. Cette collaboration est organisée autour du Programme sur l'Aval du Cycle et l'Energie Nucléaire (PACEN) du CNRS et du groupement de recherche "Gestion des Déchets et Production d'Energie par Options Nouvelles" (GéDéPEON).

1.2.2 La transmutation

L'objectif de la transmutation des déchets nucléaires est de transformer un noyau radioactif à vie longue en noyau stable ou à vie courte dans le but de réduire la radiotoxicité à long terme des déchets. Pour les produits de fission (à vie longue), le processus de transmutation repose sur la capture d'un ou plusieurs neutrons pour atteindre un noyau moins radiotoxique. Le cas d'école est donné par le technicium ^{99}Tc ($T_{1/2} = 2,1 \cdot 10^5$ s) qui produit un noyau stable par la réaction :



Pour les actinides mineurs (Np, Am, Cm) la capture neutronique n'est pas une solution intéressante puisque cette réaction conduit à des noyaux plus radioactifs et radiotoxiques (souvent émetteurs de neutrons par fission spontanée). La transformation de ces actinides en noyaux moins radiotoxiques passe par l'incinération, c'est-à-dire la fission induite par neutrons. Les cendres de cette incinération sont alors des produits de fission du même type que ceux existant actuellement. Dans cette gestion du combustible usé, les produits de fission deviennent

les seuls déchets ultimes de la production d'énergie par fission nucléaire.

Au terme de 15 années de recherche, des avancées majeures ont pu démontrer la faisabilité de la transmutation des actinides mineurs et des produits de fission à vie longue dans les installations existantes ou à construire. Plusieurs solutions sont à l'étude. Les principaux projets de recherche ont conduit à expérimenter ou simuler les installations du type :

- transmutation dans des réacteurs à neutrons thermiques de type REP ;
- transmutation dans des réacteurs à neutrons thermiques à haut flux (type ILL) ;
- transmutation dans des réacteurs à neutrons rapides (RNR) de type Phenix (EFR) ;
- transmutation dans des systèmes hybrides associant un réacteur sous-critique et une source de neutrons par spallation, connus sous le nom d'Accelerator-Driven System (ADS).

Quel que soit le processus retenu, il apparaît la nécessité de séparer les éléments, voire les isotopes ($^{135,137}\text{Cs}$)², afin de ne pas générer de nouveaux radionucléides à vie longue ou radiotoxiques. Si la séparation à l'échelle du laboratoire est effective, la faisabilité à l'échelle industrielle reste à démontrer.

Au niveau des actinides mineurs, les résultats des expérimentations ou des calculs par simulation permettent d'orienter les recherches : le tableau (tab.1.6) montre l'évolution du rapport α (rapport des taux de capture et de fission) en fonction du spectre en énergie de neutrons pour les principaux actinides présents dans le combustible utilisé. Il apparaît deux faits importants :

- la production de plutonium ^{239}Pu est équivalente quel que soit le spectre de neutrons utilisés (thermiques, épithermiques ou rapides). La génération des isotopes ^{241}Pu et ^{243}Pu conduisant aux isotopes de l'américium ^{241}Am et ^{243}Am est moindre dans un spectre de neutrons rapides ;
- la disparition des actinides mineurs (Np, Am, Cm) est plus indiquée dans un spectre de neutrons rapides (RNR ou ADS).

Ces deux points permettent d'alimenter différents scénarii quant aux traitements des déchets nucléaires et au devenir de la production d'énergie électro-nucléaire. Le parc de réacteurs dans le futur pourrait voir l'apparition de réacteurs dédiés à la transmutation (RNR ou ADS) en marge des réacteurs à neutrons lents type (REP et les futurs EPR : European Pressurized Reactor). Une autre voie serait le passage progressif à un parc de réacteurs rapides capables de brûler eux-mêmes leurs déchets. Dans les deux cas, la répartition des actinides mineurs dans le cœur du réacteur peut être faite suivant deux modes :

- les actinides mineurs sont répartis dans l'ensemble des crayons du cœur de façon

²La présence de ^{133}Cs (stable) et ^{134}Cs (2 ans) est susceptible de régénérer en partie le ^{135}Cs (2.10^6 ans) par captures neutroniques [Va06].

- homogène (mode homogène) ;
- les actinides mineurs sont placés dans des crayons spécifiques riches en actinides (mode hétérogène).

Isotope	Réacteur à neutrons lents (REP)	Réacteur à neutrons épithermiques (REP-MOX)	Réacteur à neutrons rapides (RNR)
	$\alpha = \frac{\int \sigma_c \phi dE}{\int \sigma_f \phi dE}$		
	Actinides majeurs		
^{235}U	0,22	0,3	0,29
^{238}U	8,3	6,5	7,5
^{238}Pu	12	4,2	0,53
^{239}Pu	0,6	0,6	0,3
^{240}Pu	396,6	35,1	1,6
^{241}Pu	0,40	0,3	0,19
^{242}Pu	65,5	24,6	1,8
	Actinides Mineurs (AM)		
^{237}Np	63	30	5,3
^{238}Np	0,1	0,1	0,05
^{241}Am	100	44,5	7,4
^{242}Am	1,9		0,19
^{242m}Am	0,23	0,2	0,18
^{243}Am	111	63,4	8,6
^{242}Cm	3,9	3,6	1,7
^{243}Cm	0,16	0,2	0,14
^{244}Cm	16	13,1	1,4
^{245}Cm	0,15	0,2	0,18

TAB. 1.6 – Rapport α ($= \frac{\text{taux de capture}}{\text{taux de fission}}$) en fonction du spectre de neutrons [Va06].

Dans les deux cas, la présence en quantité non-négligeable d'actinides mineurs perturbe le comportement des éléments du réacteur. La mise en pratique de l'incinération des déchets nucléaires, quelle que soit la solution choisie, demande une bonne connaissance des propriétés des noyaux présents dans le coeur.

1.2.3 Entreposage en surface et stockage géologique

Le stockage en surface des déchets nucléaires est déjà effectif concernant les déchets de très faible, faible et moyenne activité. L'expérience acquise à la Hague et à Cadarache sur le stockage des déchets de haute activité permet de penser que la technique est maîtrisée. Toutefois les questions de la surveillance et de la maintenance à long terme restent des questions ouvertes au-delà de l'aspect scientifique. Pour de nombreux pays et l'IAEA (International Atomic Energy Agency), la solution du stockage géologique semble être la référence au niveau du confinement

et de la sécurité des populations. Les résultats du laboratoire souterrain de Bure confirment les résultats obtenus sur les propriétés de confinement des radionucléides par l'argile [Ba06]. L'analyse globale des moyens de gestion des déchets montre qu'il y aura toujours des déchets de haute radioactivité à gérer sur le long terme (au moins 200 ans pour les produits de fission). Par conséquent des sites de stockage de longue durée semblent être incontournables. Toutefois, l'exemple du site des Yucca Mountain aux Etats-Unis montre la nécessité de retraiter les déchets dans le but de minimiser les volumes : ce site doit recevoir le combustible usé sorti des piscines de refroidissement sans aucun traitement ni réduction des volumes. Par conséquent, il est théoriquement rempli par les déchets accumulés durant les trente dernières années, avant même d'être opérationnel.

La gestion des déchets sur le long terme ne peut donc pas se contenter d'un stockage en l'état du combustible usé. Le retraitement devient une étape indispensable pour la plupart des pays, y compris les Etats-unis. Dès lors, la transmutation des actinides mineurs apparaît comme un outil complémentaire au stockage dans la gestion des déchets ; ce stockage restant nécessaire pour la gestion des produits de fission.

1.3 Données nucléaires pour la transmutation

Les données nucléaires existantes dans la région des actinides sont fortement orientées par la nécessité de maîtriser les grandeurs utiles à l'étude des réacteurs. La figure (fig.1.3) montre les mesures répertoriées dans EXFOR³ des sections efficaces de fission pour les principaux isotopes des actinides présents dans l'inventaire du combustible usé. Ces isotopes sont ceux qui ont été les plus étudiés au sein de leur chaîne isotopique. On observe la diminution du nombre de séries de mesures (tab.1.7) nécessaires à l'évaluation des sections efficaces.

Isotope	nombre de série de mesures	nombre de points de mesures	propriété	erreur
^{235}U	~ 100	2453	fissile	$\sim 2,5\%$
^{238}U	~ 50	1461	fertile	1 à 2%
^{239}Pu	~ 100	789	fissile	$\sim 2,5\%$
^{237}Np	44	3021	non-fissile	$\sim 8\%$
^{241}Am	28	419	non-fissile	$\sim 10\%$
^{244}Cm	10	152	non-fissile	$\sim 45\%$

TAB. 1.7 – Nombre de séries de mesures et nombre de points de mesures sélectionnés pour les évaluations dans le domaine des neutrons rapides $[0,1 ; 20]$ MeV [NNDC08] [Sa08].

La faiblesse des données au niveau des américiums et des curiums s'explique par plusieurs raisons concomitantes :

³Experimental Nuclear Reaction Data (EXFOR / CSISRS) via <http://www.nndc.bnl.gov/>

- les actinides mineurs étant présents à hauteur de 1% dans le combustible usé, l'imprécision des mesures sur les propriétés de ces noyaux n'a pas de conséquence majeure dans la précision du cycle du combustible et la sûreté de l'exploitation actuelle.
- il est nécessaire de disposer d'isotopes purs afin de réaliser les expériences dans de bonnes conditions ainsi que d'installations capables de gérer ces cibles fortement radioactives.
- les activités très importantes de ces noyaux rendent très délicates la fabrication de cibles, leur manipulation et leur tenue dans le temps. Il n'est donc possible de déposer que de très faibles quantités de matière (quelques centaines de microgrammes pour les $^{241,243}\text{Am}$ et seulement quelques centaines de nano-grammes pour les $^{242,243,244}\text{Cm}$). Ces faibles quantités placées dans un flux de neutrons monoénergétiques (qqes 10^6 à 10^8 neutrons/(cm^2s)) donnent des taux de réactions très faibles qui rendent les expériences très longues, voire quasiment impossibles pour certains curiums (^{244}Cm $T_{1/2} = 18$ ans).

Ces éléments contribuent à expliquer le peu de données existantes au niveau des américiums et des curiums. La section efficace de fission est la réaction la plus facile à mesurer en raison de la masse des fragments de fission et de l'énergie qu'ils emportent (~ 200 MeV). Les autres réactions telles que la capture radiative (n, γ), la diffusion inélastique (n, n') et l'émission de neutrons ($n, 2n$) présentent un manque de données encore plus probant. Prévoir des réacteurs dans le but d'incinérer ces déchets demande une précision accrue afin de maintenir la sûreté des installations avec un combustible contenant de l'ordre de 5 à 10% d'américium, voire du curium. Un effort particulier doit donc être apporté pour ces noyaux afin de pouvoir gérer au mieux leurs évolutions.

Le rapport du sous-groupe 26 du WPEC⁴ de l'agence pour l'énergie nucléaire (NEA) [Sa08] présente un bilan des incertitudes sur les sections efficaces évaluées pour les différents concepts de réacteurs de quatrième génération (GEN-IV). Pour les actinides mineurs, les incertitudes sur les sections efficaces de fission sont de l'ordre 10% pour les $^{241,243}\text{Am}$ mais atteignent 45% pour les $^{242,243,244}\text{Cm}$. Si l'on souhaite développer des réacteurs à neutrons rapides, il est nécessaire de réduire ces incertitudes à 5-7% pour les américiums et 5 à 20% suivant le type de réacteur choisi (type EFR⁵, SFR⁶, GFR⁷...). Dans le cas d'un réacteur "incinérateur" dans lequel il est prévu de charger une quantité importante d'actinides mineurs, les incertitudes sur ces noyaux doivent être réduites entre 3 et 7% pour garantir la faisabilité des installations.

⁴Working Party on international Evaluation Co-operation of the NEA Nuclear Science Committee.

⁵European Fast Reactor

⁶Sodium-cooled Fast Reactor

⁷Gaz-cooled Fast Reactor

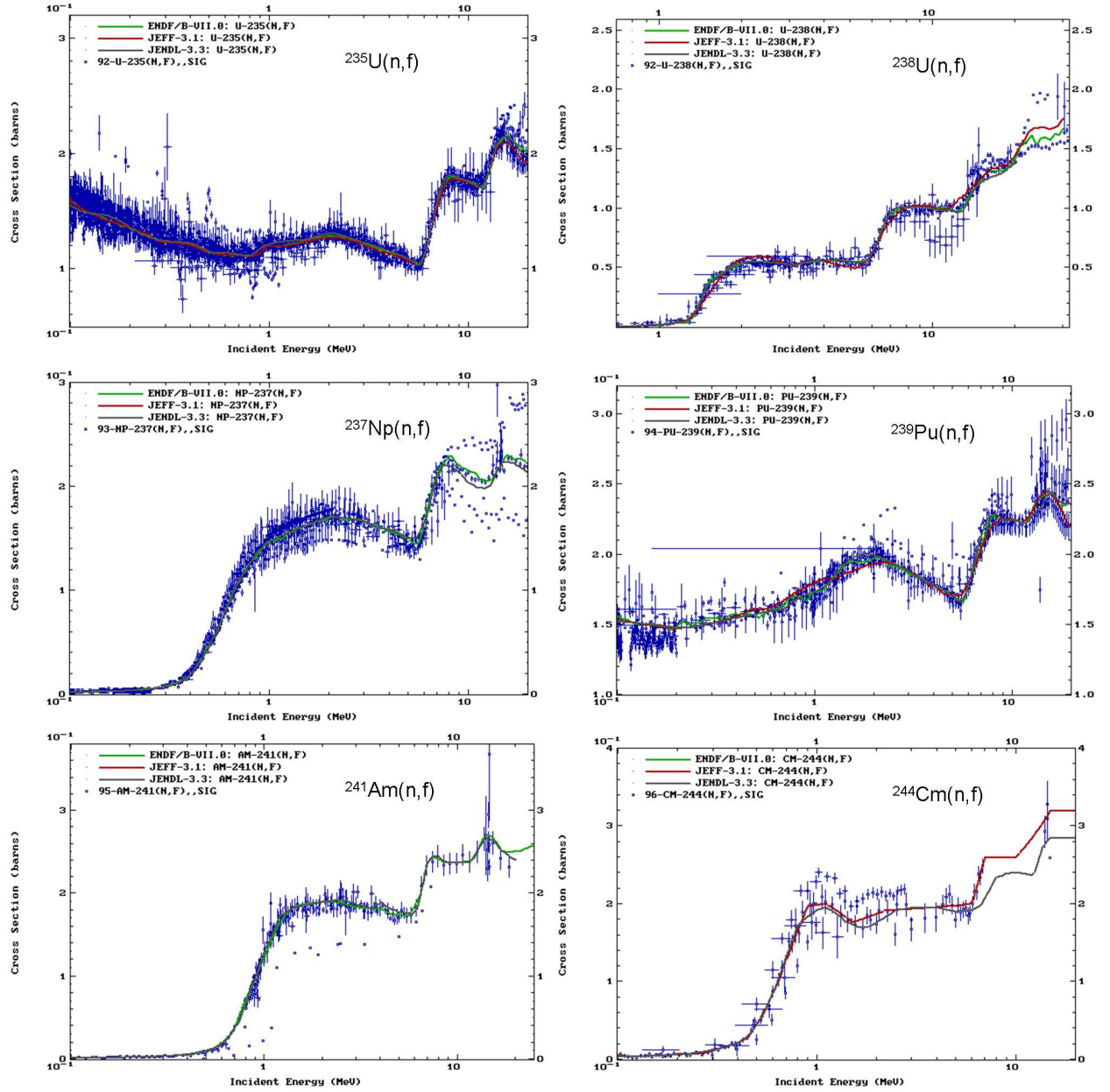


FIG. 1.3 – Sections efficaces de fission induites par neutrons rapides des principaux actinides présents dans les réacteurs REP (données NNDC - EXFOR) [EXFOR].

Conclusion

Les enjeux économiques et écologiques mondiaux laissent penser que la production d'énergie par fission nucléaire a un rôle majeur à jouer dans ce siècle, si l'on souhaite limiter le réchauffement climatique lié à l'activité humaine. Néanmoins, la gestion des déchets nucléaires est aujourd'hui un élément clé pour garantir la pérennité de cette source d'énergie. Les études menées jusqu'à présent et les solutions adoptées dans les différents pays disposant de réacteurs nucléaires, montrent que le retraitement des déchets est incontournable afin de limiter les volumes de déchets à stocker. La recherche de solutions multiples à la gestion des déchets (trois axes de recherche) est un moteur permettant de gérer au mieux les différents éléments produits dans les réacteurs. Les résultats actuels montrent que le choix de la transmutation doit se porter dans un premier temps sur les actinides mineurs et en particulier les américiums $^{241,243}\text{Am}$ en raison de leur forte radiotoxicité à long terme. La transmutation de produits de fission à vie longue est possible à condition de séparer isotopiquement les noyaux à traiter ; néanmoins, le choix du stockage semble être retenu.

Toutes ces études nécessitent une connaissance approfondie des radionucléides "clés" produits, que ce soit pour leur incinération ou la prévision précise des déchets à venir dans de nouvelles installations. Dans les chapitres suivants nous présenterons les mesures réalisées au cours de ce travail sur des isotopes de l'américium et du curium.

Chapitre 2

Objectifs et méthodes

Les données nucléaires dans la région des actinides reste une nécessité en raison du peu de mesures existantes pour certains noyaux et des difficultés de prévision des grandeurs d'intérêts du point de vue de la physique fondamentale (sections efficaces, distributions en masses et en charges de fragments de fission ...). Les incertitudes importantes de ces grandeurs clés ont des répercussions directes dans les prévisions de fonctionnement des installations existantes (inventaires des radionucléides des déchets, coefficient de sûreté ...) et dans la recherche et le développement des systèmes du futur. Le peu de données disponibles est lié à la difficulté des mesures à réaliser et des moyens nécessaires. Les difficultés de mesures de sections efficaces d'isotopes de courte durée de vie proviennent du rayonnement intense (des cibles) imposé au dispositif expérimental et de la radioprotection entourant l'expérience. Ainsi, la faible quantité manipulable doit être bien maîtrisée, tout en assurant la faisabilité de l'expérience soumise à un taux de réaction acceptable. Pour des radionucléides disponibles avec le degré de pureté requis, la première condition à la faisabilité de l'expérience est la disponibilité des cibles avec les caractéristiques nécessaires. Dans ce travail, deux techniques ont été utilisées afin de réaliser de nouvelles mesures des sections efficaces de fission sur des isotopes de l'américium et du curium.

Dans la première partie, nous nous intéresserons à la mesure de la section efficace de fission induite par neutrons de l' ^{243}Am , pour laquelle il est possible de disposer de cibles pures permettant la réalisation de mesures directes sous flux de neutrons. La méthode utilisée va permettre de fournir de nouvelles données dans le domaine des neutrons rapides indépendantes des mesures existantes.

La mesure de sections efficaces de fission induites par neutrons au niveau des curiums se heurte à la faisabilité des cibles non-scellées manipulables dans les conditions requises à l'expérience. De plus, l'instrumentation utilisée doit résister à l'irradiation en particules α très im-

portante générée par ces noyaux. Une méthode particulière a été développée afin de répondre à ces difficultés : l'objectif est de réaliser le noyau souhaité par une réaction de substitution en partant d'un noyau-cible manipulable. Dans la seconde partie de ce chapitre, nous présenterons les méthodes existantes et le principe de notre méthode.

2.1 Mesure directe d'une section efficace de fission : $^{243}\text{Am}(n, f)$

2.1.1 Les techniques de mesure

La mesure d'une section efficace de fission, induite par neutrons mono-énergétiques, sur une cible mince, fait intervenir quatre quantités :

$$\sigma_{(n,f)}(En) = \frac{\tau_{(n,f)}}{\phi_n(En) \cdot N \cdot \epsilon_f} \quad (2.1)$$

où

- $\sigma_{(n,f)}$: section efficace de fission ;
- $\tau_{(n,f)}$: taux de fission ;
- ϕ_n : flux de neutrons arrivant sur l'échantillon ;
- ϵ_f : représente l'efficacité de détection des fragments ;
- N : nombre d'atomes dans l'échantillon.

Déterminer la section efficace nécessite de corriger le taux de fission de l'efficacité de détection (ϵ_f), de connaître la composition de l'échantillon (N) et le flux de particules incidentes. En règle générale, les termes ϵ_f et N peuvent être connus avec une précision satisfaisante. En revanche, le flux est le paramètre délicat à mesurer. Contrairement aux particules chargées, les neutrons n'ionisent pas la matière et leur détection passe nécessairement par une réaction nucléaire secondaire (diffusion élastique, fission, (n, α)), produisant une (ou plusieurs) particule(s) chargée(s) ou photons dont la détection peut être faite par les moyens usuels. La section efficace de fission que l'on recherche est déduite d'un rapport de taux de réaction :

$$\frac{\sigma(^AX)}{\sigma(Y_{ref})} = k \cdot \frac{\tau(^AX)}{\tau(Y_{ref})} \quad (2.2)$$

où

- $\tau(^AX)$ est le taux de réaction sur le noyau AX dans un flux de neutrons.
- $\tau(Y_{ref})$ est le taux de réaction sur le noyau de référence Y_{ref} dans un flux de neutrons.
- $\sigma(Y_{ref})$ est la section efficace de référence induite par neutrons du noyau Y_{ref}
- $\sigma(^AX)$ est la section efficace de réaction sur le noyau AX induite par neutrons
- k facteur regroupant la géométrie et les quantités de matière

Les réactions de référence les plus utilisées sont les suivantes : $^6\text{Li}(n, \alpha)$, $^{10}\text{B}(n, \alpha_1)^1$, $^{235}\text{U}(n, f)$, $^{238}\text{U}(n, f)$ et le $^{239}\text{Pu}(n, f)$ (fig.2.1). Les deux premières font intervenir des noyaux légers dont les sections efficaces présentent, au-dessous de 100 keV, une variation en $1/\sqrt{En}$. C'est à basse énergie de neutrons que ces deux réactions sont les plus utilisées. Les précisions

¹Les réactions $^{10}\text{B}(n, \alpha_0)^7\text{Li}^{GS}$ et $^{10}\text{B}(n, \alpha_1)^7\text{Li}^*$ forment un noyau de lithium ^7Li , respectivement, dans l'état fondamental (4%) et le premier état excité (96%).

estimées par le Cross Section Evaluation Working Group (CSEWG)² et acceptées par la communauté sont de l'ordre de 1,8% (à 100keV) pour la réaction $^6\text{Li}(n, \alpha)$ [JE05] et 2% pour la réaction $^{10}\text{B}(n, \alpha_1)$ [JE05].

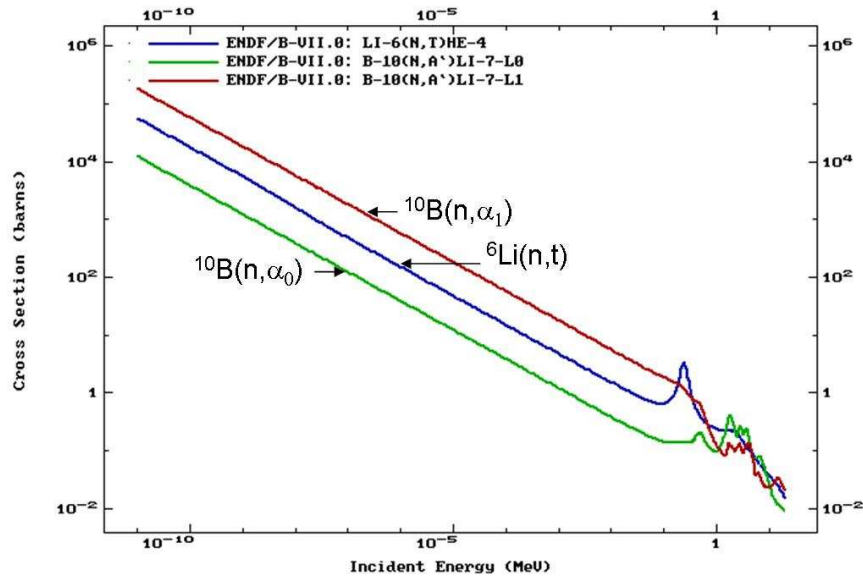


FIG. 2.1 – Section efficace de réaction induite par neutrons $^6\text{Li}(n, \alpha)$, $^{10}\text{B}(n, \alpha_0)$ et $^{10}\text{B}(n, \alpha_1)$ [NNDC08].

Au-delà de 100 keV, la réaction de fission $^{235}\text{U}(n, f)$ est la plus utilisée avec les réactions $^{238}\text{U}(n, f)$ et le $^{239}\text{Pu}(n, f)$. Comme le montre la figure (fig.2.2) et le tableau (tab.2.1), dans le domaine des neutrons rapides (de 0,1 à 20 MeV), les sections efficaces de fission de ces noyaux sont connues à quelques pourcents (par exemple pour $^{235}\text{U}(n, f)$, de 1 à 2,5% entre 0,1 et 10 MeV). On notera que les données évaluées proposées par les trois principales banques de données sont en bon accord, même s'il subsiste localement quelques écarts.

²Le Cross Section Evaluation Working Group (CSEWG) est une collaboration entre les laboratoires nationaux des USA, l'industrie et le Canada, qui fournit les données présentes dans U.S. Evaluated Nuclear Data File ENDF/B.

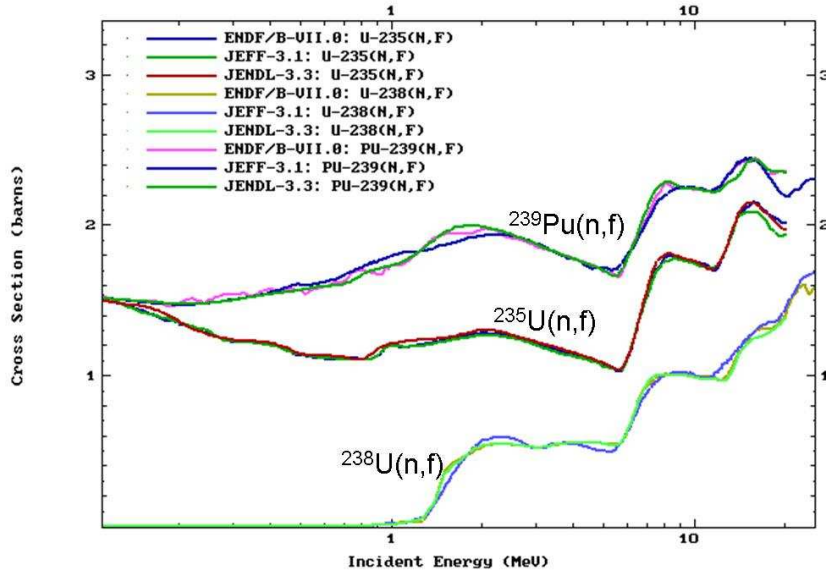


FIG. 2.2 – Sections efficaces évaluées de fission des trois principales bibliothèques : $^{235}\text{U}(n, f)$, $^{238}\text{U}(n, f)$ et $^{239}\text{Pu}(n, f)$ [NNDC08].

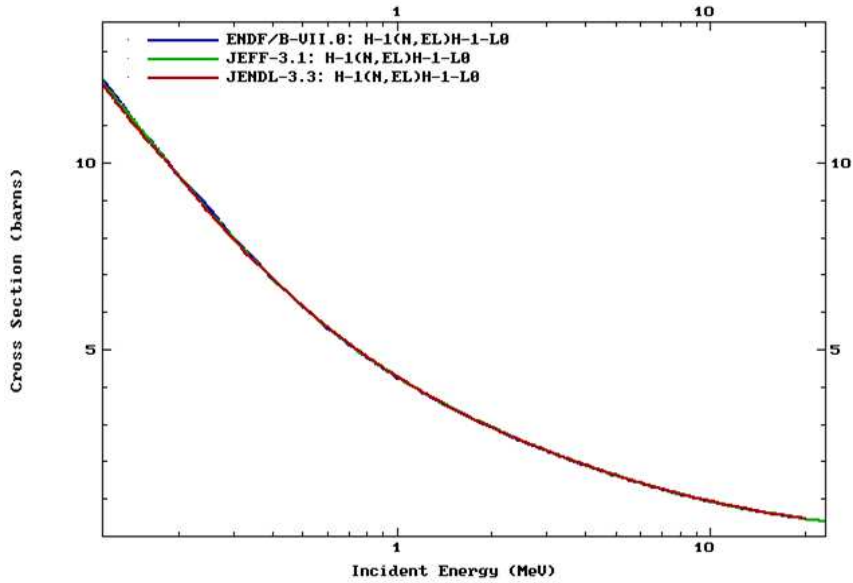


FIG. 2.3 – Section efficace évaluée de diffusion élastique $^1\text{H}(n, p)$ [NNDC08].

Parmi les sections efficaces de référence, une des réactions les plus connues est la diffusion élastique neutron sur proton (n,p) (fig.2.3 & tab.2.1). Du fait du grand nombre de données existantes concernant cette réaction fondamentale de la physique nucléaire, la section efficace de diffusion élastique (n,p) est connue avec une précision meilleure que 0,5% dans le domaine

d'énergie de neutrons inférieure à 20 MeV [Ha06]. Néanmoins, cette réaction a été peu utilisée dans le domaine des neutrons qui nous concerne alors même qu'elle permet des mesures de grande précision. Dans les années 70, la première évaluation complète de cette réaction [Ho71] a été utilisée pour réaliser la première mesure quasi-absolue de la section efficace de fission $^{235}\text{U}(n, f)$ pour des énergies de neutrons comprises entre 1 et 6 MeV [Ba76]. A notre connaissance, cette réaction de référence a été peu employée et ce n'est que très récemment qu'elle a été utilisée pour mesurer la section efficace de fission de ^{233}U [Gr05].

E_n (keV)	$^1\text{H}(n, p)$ (%)	$^{10}\text{B}(n, \alpha_1)$ (%)	$^6\text{Li}(n, t)^4\text{He}$ (%)	$^{235}\text{U}(n, f)$ (%)	$^{238}\text{U}(n, f)$ (%)
1, 0, 10^{-8} - 0,1	0,20	0,2	0,3	0,5	-
0,1 - 1,0	0,20	0,4	0,5	0,5	-
1,0 - 5,0	0,20	0,4	0,7	0,6	-
5,0 - 10,0	0,20	0,6	0,7	0,6	-
10,0 - 30,	0,20	0,6	0,9	1,3	-
30, - 50,	0,20	1,0	0,9	0,6	-
50, - 90,	0,20	1,0	1,1	0,6	-
90, - 150	0,20	1,5	1,5	0,7	-
150 - 200	0,20	2,0	2,0	1,3	-
200 - 250	0,20	2,5	2,0	1,1	-
250 - 450	0,20	-	2,0	1,1	-
450 - 650	0,20	-	5,0	0,8	-
650 - 800	0,20	-	2,0	0,7	-
800 - 1000	0,20	-	5,0	0,8	-
1000-2000	0,20	-	-	1,8	1,3
2000-3000	0,22	-	-	1,8	0,8
3000-4000	0,22	-	-	2,3	0,8
4000-6000	0,30	-	-	2,3	0,9
6000-8000	0,36	-	-	2,2	1,0
8000-10000	0,44	-	-	2,2	0,9
10000-12000	0,50	-	-	1,8	1,1
12000-14000	0,49	-	-	1,2	0,9
14000-14500	0,46	-	-	0,8	0,7
14500-15000	0,46	-	-	1,5	0,8
15000-16000	0,46	-	-	2,0	1,0
16000-17000	0,40	-	-	2,5	1,0
17000-18000	0,40	-	-	3,0	1,1
18000-19000	0,35	-	-	3,0	1,1
19000-20000	0,35	-	-	4,0	1,2

TAB. 2.1 – Erreurs sur les sections efficaces de référence évaluées fournies par les bibliothèques (ENDF, JENDL, JEFF) [NNDC08].

2.1.2 L'état des lieux.

L' ^{243}Am est un noyau non fissile au même titre que le ^{232}Th , le ^{237}Np et l' ^{238}U . Son seuil de fission se situe au niveau du MeV (fig.2.4), c'est-à-dire entre celui de ^{237}Np et de l' ^{238}U . Cette propriété est souvent utilisée pour caractériser les flux de neutrons rapides (détecteur à seuil). Au-dessous de cette énergie, ce noyau présente une section efficace de fission non négligeable : de l'ordre de 80 mb à 25 meV à comparer à quelques micro-barns pour le ^{232}Th et l' ^{238}U . Dans le domaine des neutrons thermiques et épi-thermiques, les données publiées

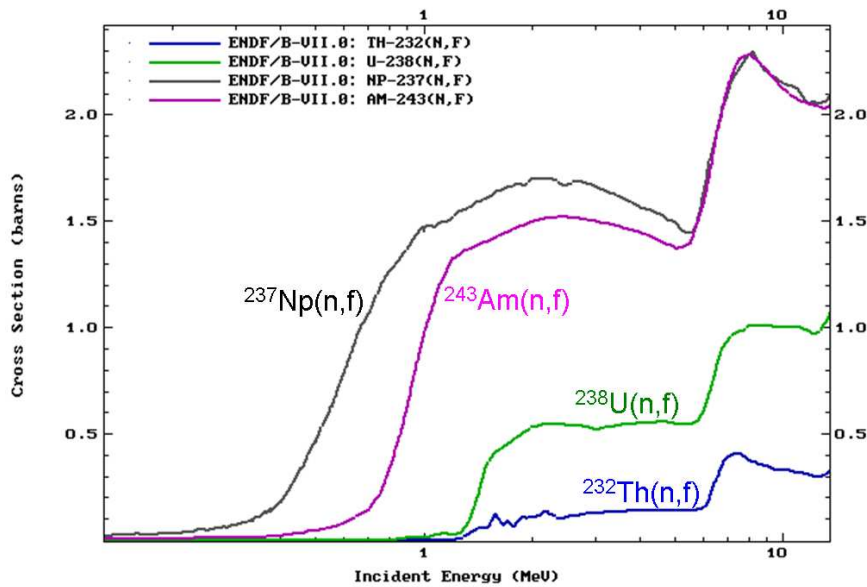


FIG. 2.4 – Sections efficaces de fission induites par neutrons de noyaux fertiles : $^{232}\text{Th}(n, f)$, $^{237}\text{Np}(n, f)$, $^{238}\text{U}(n, f)$ et $^{243}\text{Am}(n, f)$ [NNDC08].

dans la base EXFOR sont encore peu nombreuses (3 en dessous de 0,1 MeV) et contradictoires. Nous avons rassemblé dans le tableau (tab.2.2) l'ensemble des mesures publiées dans EXFOR (2008) [NNDC08]. On constate que quinze mesures ont été réalisées entre 1960 et 2004 pour la plus récente (tab.2.2 & fig.2.5). La plupart d'entre elles sont des mesures relatives à la réaction $^{235}\text{U}(n, f)$. Les précisions de ces mesures se situent entre 2% et 5%. Pour beaucoup d'entre elles, seule l'erreur statistique est prise en compte. La figure (fig.2.5) présente ces mesures dans la gamme d'énergie comprise entre 0,1 et 10 MeV. L'ouverture de la fission de première chance est bien décrite par l'ensemble des mesures. En revanche, on notera que deux familles de données apparaissent à partir de cette première chance de fission. L'écart moyen entre ces deux familles est compris entre 10 et 15%. La première famille comprend les mesures de H.-H.Knitter [Kn88], B.I.Fursov [Fu85], D.K.Butler [Bu61], K.Kanda [Ka87] et V.Ya [Ya99]. Elle prévoit un plateau de première chance autour de 1,5 barn. Soulignons que toutes les évaluations sont basées sur ces

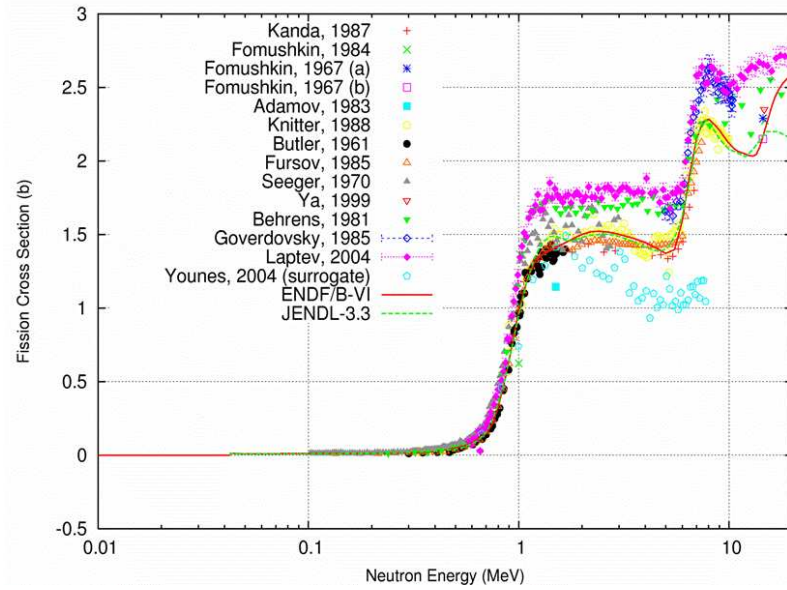


FIG. 2.5 – Données sur $^{243}\text{Am}(n, f)$ présentes dans la base EXFOR au niveau des neutrons rapides [Ta05] [Ta07].

mesures. La seconde famille prévoit un plateau de première chance plus élevé, au voisinage de 1,7 barn. Parmi ces trois mesures [La04] [Go85] [Be81], deux d'entre elles sont normalisées sur la mesure de J.W.Behrens effectuée en 1981 [Be81]. Ces dernières mesures se détachent nettement des évaluations. Néanmoins, au-delà de 1 MeV, l'écart systématique entre les deux familles semble provenir d'une mauvaise normalisation des données. De plus, une mesure intégrale de la réaction $^{243}\text{Am}(n, f)$ effectuée auprès du réacteur ZEBRA [Sw77] [Kn88] (spectre rapide) est en accord avec les mesures de H-H.Knitter alors que les données de J.W.Behrens conduisent à une section efficace de fission d'environ 12% plus élevée que cette mesure. Notons que cette mesure intégrale est surtout sensible au domaine d'énergie légèrement supérieure au seuil de fission (autour du MeV). En résumé et malgré la précision moyenne de 20% de cette mesure intégrale, elle accrédirait les mesures de la première famille.

Auteurs	spectre de neutrons	types de mesures	détecteur fission
J.W.BEHRENS 1981	spectre blanc (TOF)	relative ^{235}U	chambre d'ionisation
A.V.FOMICHEV 2004	spectre blanc(TOF)	relative ^{235}U	chambre d'ionisation
A.A.GOVERDOVSKIY 1986	monoénergétique	relative ^{235}U	chambre d'ionisation
H.TERAYAMA 1986	monoénergétique	relative ^{235}U	chambre d'ionisation
K.KANDA 1987	monoénergétique	relative ^{235}U	chambre d'ionisation
B.I.FURSOV 1985	monoénergétique	relative ^{239}Pu	détecteur de traces
E.F.FOMUSHKIN 1984	monoénergétique (14,5 MeV)	relative ^{235}U	détecteur de traces
P.A.SEEGER 1970	spectre blanc(TOF)	relative ^{235}U	barrière de surface
E.F.FOMUSHKIN 1967	monoénergétique (14,8 MeV)	relative ^{238}U , ^{237}Np	détecteur de traces
D.K.Butler 1961	monoénergétique	relative ^{235}U	scintillateur gazeux
H.KNITTER 1988	monoénergétique/ spectre blanc (TOF)	relative ^{235}U relative ^{235}U	chambre d'ionisation chambre d'ionisation
V.YA 1999	monoénergétique (14,7MeV)	absolue - part. associée ¹	chambre d'ionisation
A.V.LAPTEV 2004	spectre blanc (TOF)	relative ^{235}U	chambre d'ionisation
V.M.ADAMOV 1983	monoénergétique	absolue - part. associée	
H.C.Britt 1979 - W.Younes 2004	—	indirecte : "surrogate"	barrière de surface

TAB. 2.2 – Mesures de la section efficace de fission de ^{243}Am présentes sur EXFOR (2008) [NNDC08]

La dernière mesure dans le tableau (tab.2.2) concerne une mesure indirecte de la réaction $^{243}\text{Am}(n, f)$. Cette mesure indirecte de la section efficace de fission combine une mesure de la probabilité de fission du noyau ^{244}Am par réaction de transfert avec un calcul de la formation du noyau $^{243}\text{Am} + n$. Le produit de ces deux quantités permet d'obtenir la section efficace de fission. Cette section efficace, pour la fission de première chance, est 20% plus faible que l'évaluation. Nous discuterons plus en détail de cette méthode et de l'origine probable de cet écart systématique dans la partie suivante.

¹(tab.2.2) Les mesures absolues de flux de neutrons sont réalisées en détectant la particule associée à l'émission du neutron dans une réaction binaire (ex : pour les réactions $D(d, n)^3\text{He}$, $T(p, n)^3\text{He}$, $T(d, n)^4\text{He}$, la particule associée est, respectivement, ^3He ou ^4He)

2.1.3 Objectifs et choix de la méthode

De la discussion précédente, il ressort que la plupart des mesures sont réalisées par rapport à la réaction $^{235}\text{U}(n, f)$. Il apparaît deux familles de mesures dont l'une prévoit une section efficace de première chance 10% à 15% plus élevée que l'autre sur laquelle s'appuient toutes les évaluations. Toutes les mesures indiquent une erreur inférieure ou égale à 5%. Nous pensons que l'écart entre ces deux familles résulte d'un problème de normalisation. L'objectif de ce travail a été de résoudre ce problème. Notre approche est basée sur la diffusion élastique (n,p) comme réaction de référence. Notre but n'a pas été de remesurer complètement cette section efficace, mais de parcourir à partir de plusieurs énergies de neutrons (1,8 à 8 MeV) la fission de première chance et la montée de la seconde chance. Pour chaque point de mesure, un effort particulier a été développé pour réduire les erreurs statistiques et évaluer les différentes sources d'erreurs systématiques.

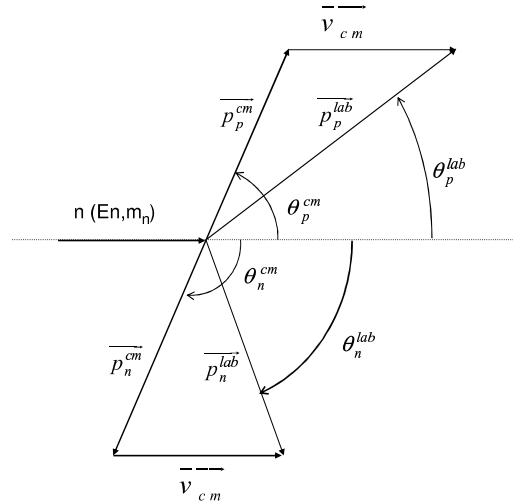


FIG. 2.6 – Schéma cinématique de la diffusion élastique (n,p).

L'interaction d'un neutron avec un proton obéit à la cinématique de la diffusion élastique (n,p). Nous allons en rappeler les équations fondamentales. Les lois de conservation de l'énergie

et de l'impulsion conduisent aux équations suivantes (fig.2.6) :

$$E_p = 4 \cdot \frac{m_n \cdot m_p}{(m_n + m_p)^2} \cdot E_n \cdot \cos^2(\theta_p^{lab}) \quad (2.3)$$

$$\tan(\theta_n^{lab}) = \frac{\sin(\theta_n^{cm})}{\frac{m_n}{m_p} + \cos(\theta_n^{cm})} \quad (2.4)$$

$$\theta_p^{lab} = \frac{\theta_p^{cm}}{2} \quad (2.5)$$

$$\pi = \theta_p^{cm} + \theta_n^{cm} \quad (2.6)$$

où

- E_p : énergie du proton de recul de masse m_p
- E_n : énergie du neutron incident de masse m_n
- θ_p : angle d'émission du proton (dans le laboratoire (lab) ou le centre de masse (cm))
- θ_n : angle d'incidence du neutron (dans le laboratoire (lab) ou le centre de masse (cm))

En négligeant la différence de masse entre le proton et le neutron, ces expressions se simplifient et l'on peut écrire dans le laboratoire :

$$E_p = E_n \cdot \cos^2(\theta_p^{lab}) \quad (2.7)$$

$$\theta_p^{lab} = \frac{\theta_p^{cm}}{2} \quad (2.8)$$

$$\frac{\pi}{2} = \theta_p^{lab} + \theta_n^{lab} \quad (2.9)$$

A partir de ces relations et en négligeant les effets d'anisotropie associés à la diffusion (n,p), le nombre $N_p(E_p)$ de protons d'énergie de recul E_p , à dE_p près, s'écrit :

$$N_p(E_p) dE_p = \frac{\sigma_{(n,p)}^{tot}(E_n)}{E_n} dE_p \quad (2.10)$$

où $\sigma_{(n,p)}^{tot}$ est la section efficace totale de diffusion (n,p).

La relation (eq.2.10) exprime une propriété bien connue de la diffusion des neutrons mono-énergétiques sur l'atome d'hydrogène, à savoir que le spectre en énergie des protons diffusés est uniforme entre 0 et E_n dans le système du laboratoire. Dans la pratique, deux techniques sont utilisées pour détecter le proton de recul. Un compteur proportionnel est rempli d'un gaz riche en hydrogène (H_2 ou CH_4). La pression et les dimensions du compteur sont ajustées pour arrêter tous les protons de recul. Néanmoins, les effets de bord (pour les protons émis près de l'enceinte) conduisent à une distorsion importante du spectre de protons et plus particulièrement pour des protons de basse énergie. Ceci est illustré par la figure (2.7-a) Des programmes de simulation de type Monte-Carlo permettent en principe de rendre compte de ces effets. Mais

l'efficacité corrigée reste entachée d'une erreur non-négligeable.

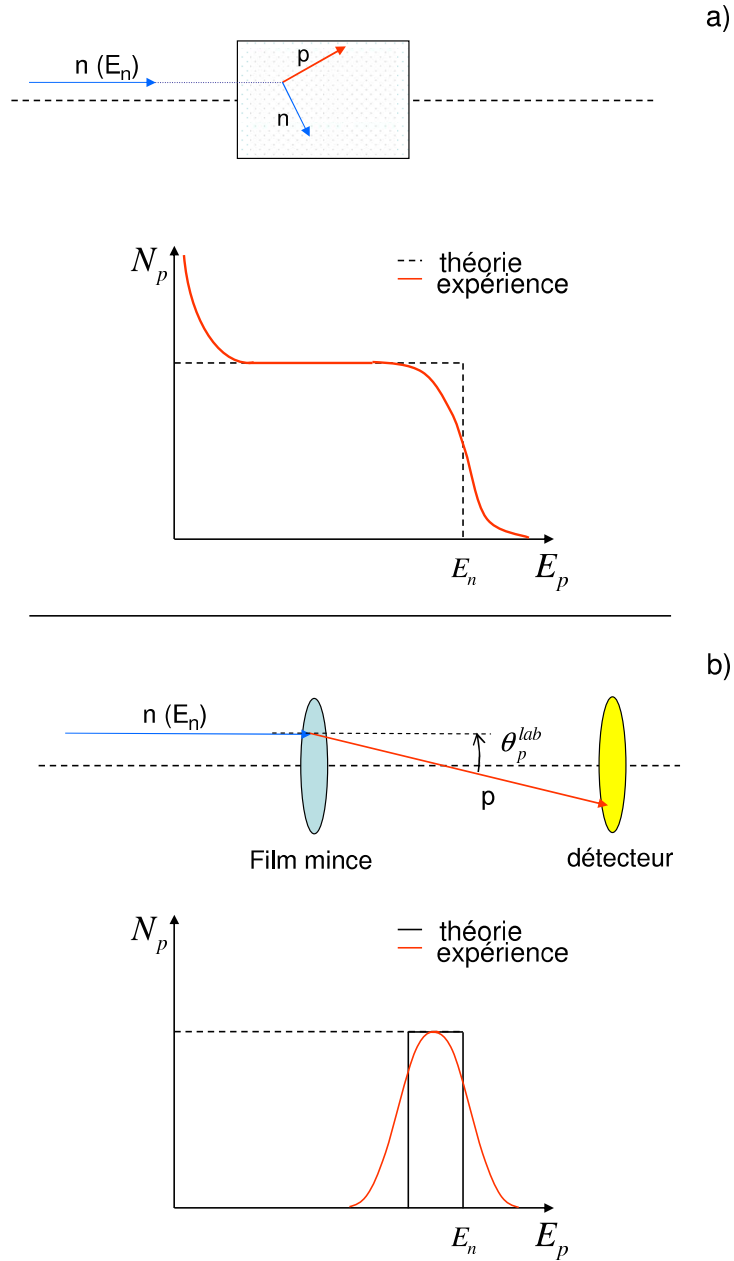


FIG. 2.7 – a) compteur proportionnel - spectre de protons diffusés en fonction de l'énergie des protons. b) {film mince hydrogéné + détecteur à 0° } - spectre de protons diffusés en fonction de l'énergie des protons. Pour les deux dispositifs, le spectre théorique des protons (courbe en noir) est dégradé par la résolution expérimentale du dispositif (courbe en rouge).

Nous nous sommes donc dirigés vers une méthode plus sélective. Un film mince, riche en hydrogène, est placé dans le flux de neutrons monoénergétiques. Les protons de recul les plus énergétiques sont mesurés par un détecteur placé à 0° dans l'axe du faisceau de neutrons. La résolution du spectre de protons est fixée par l'ouverture angulaire du détecteur et l'épaisseur du film hydrogéné (fig.2.7-b). Dans un premier temps, on place le support hydrogéné suffisamment loin de la source de neutrons pour considérer les neutrons monoénergétiques en incidence normale ($\theta_n = 0^\circ$) par rapport au film mince. Nous supposons aussi que la diffusion élastique peut être considérée comme isotrope dans le centre de masse. Dans ces conditions, la section efficace de diffusion élastique (n,p) peut s'écrire :

$$\left. \frac{d\sigma_{(n,p)}}{d\Omega} \right)_{lab}(\theta_p^{lab}) = \frac{\sigma_{(n,p)}^{tot}}{\pi} \cos(\theta_p^{lab}) \quad (2.11)$$

où

- $\left. \frac{d\sigma_{(n,p)}}{d\Omega} \right)_{lab}(\theta_p^{lab})$ est la section efficace différentielle de diffusion (n,p)
- θ_p^{lab} l'angle d'émission du proton dans le laboratoire

Pour un faisceau de neutrons mono-énergétiques et un détecteur de protons éloigné du film hydrogéné, on retrouve l'expression classique du nombre de protons détectés N_p^{det} :

$$N_p^{det}(E_n) = \phi_n(E_n) \cdot \frac{\sigma_{(n,p)}^{tot}}{\pi} \cdot N_H \cdot S_H \cdot \epsilon_p \cdot \Delta t \quad (2.12)$$

où

- ϵ_p est l'efficacité du détecteur de protons d'ouverture θ_{det} .
- Δt est la durée de l'expérience.
- N_H nombre d'atomes d'hydrogène par cm^2 dans le film mince
- S_H surface du film mince hydrogéné

A partir de cette expression simplifiée (eq.2.12), il est facile de déduire le flux de neutrons incidents au support hydrogéné. Toutefois, notre objectif est de réduire les erreurs sur la mesure du flux de neutrons et particulièrement sur la réaction de référence. Il est donc nécessaire de décrire notre dispositif au plus près de la réalité, afin de maîtriser la section efficace de diffusion élastique (n,p) à 0,5% près. La section efficace de diffusion élastique (n,p) pour des neutrons compris entre 1 et 10 MeV est légèrement anisotrope $W(0^\circ)/W(90^\circ) < 1,04$. A partir de l'évaluation de J.C.Hopkins et G.Breit [Ho71], la section efficace différentielle dans le centre de masse est représentée par un développement en polynômes de Legendre P_{Li} de paramètres $C_i(E_n)$:

$$\left. \frac{d\sigma_{(n,p)}}{d\Omega} \right)_{cm}(E_n, \theta_p^{cm}) = \sum_{i=1}^4 C_i(E_n) \cdot P_{Li}(\cos(\theta_p^{cm})) \quad (2.13)$$

Suivant l'approximation $m_n \sim m_p$, sa transformation dans le laboratoire s'exprime selon la relation suivante :

$$\left. \frac{d\sigma_{(n,p)}}{d\Omega} \right)_{lab}(E_n, \theta_p^{lab}) = \left. \frac{d\sigma_{(n,p)}}{d\Omega} \right)_{cm} \cdot 4 \cdot \cos(\theta_p^{lab}) \quad (2.14)$$

Dans la pratique, la source de neutrons est non-monoénergétique, divergente et non-ponctuelle. Les neutrons peuvent interagir avec le film mince hydrogéné avec un angle non nul. La surface du film hydrogéné se comporte comme une source étendue de protons, faisant varier l'efficacité du détecteur de protons. On désigne par $\phi(E_n, \theta_n)$ le flux de neutrons arrivant sur ce film avec un angle d'incidence θ_n et une énergie $E_n(\theta_n, \Delta E_n)$. Le nombre de protons détectés se réécrit :

$$N_p^{det} = N_H \cdot S_H \int_{\Delta t} \int_{\Delta E_n} \int_{\Delta \Omega_{det}} \left. \frac{d\sigma_{(n,p)}}{d\Omega} \right)_{lab} \cdot \phi_n(E_n, \theta_n) dE_n d\Omega dt \quad (2.15)$$

où

- $\phi_n(E_n, \theta_n)$: flux de neutrons d'énergie $E_n \pm \Delta E_n$, de divergence θ_n .
- Ω_{det} : angle solide du détecteur de protons.

L'équation (eq.2.15) est délicate à résoudre analytiquement. De plus, dans cette équation, on ne tient pas compte de l'étendue de la source de neutrons et du support hydrogéné, lui-même se comportant comme une source de protons non-ponctuelle en regard au détecteur de protons. Nous allons utiliser une méthode Monte-Carlo pour simuler le spectre des neutrons afin de décrire la diffusion des protons et leur détection. Cette simulation va prendre en compte :

- la distribution en angle et en énergie de la source de neutrons
- l'ouverture angulaire du support hydrogéné pour tenir compte de l'angle d'incidence du neutron dans la diffusion élastique.
- l'anisotropie de la diffusion élastique (n,p) en fonction de l'énergie des neutrons
- l'épaisseur du support hydrogéné et la perte d'énergie des protons dans celui-ci

La simulation permet de dégager les quantités suivantes. L'efficacité de détection de ces protons dans le laboratoire (eq.3.2) est directement égale au rapport du nombre de protons détectés sur le nombre émis. La section efficace moyenne de diffusion élastique (eq.2.17) est égale à la section efficace de diffusion (n,p) pondérée par la distribution en énergie des neutrons arrivant sur le support hydrogéné. On obtient les deux relations suivantes :

$$\epsilon_p^{sim} = \frac{N_p^{sim-det}}{N_p^{sim}} \quad (2.16)$$

$$\overline{\sigma_{(n,p)}} = \frac{\iint \left. \frac{d\sigma_{(n,p)}}{d\Omega} \right) \cdot \phi_n^{sim}(E_n, \theta_n) d\Omega dE_n}{\iint \phi_n^{sim}(E_n, \theta_n) d\Omega dE_n} \quad (2.17)$$

où

- ϵ_p^{sim} : efficacité du détecteur de protons déduite de la simulation.
- N_p : nombre de protons émis (sim) et détectés (sim-det) dans la simulation.
- ϕ_p^{sim} : flux de neutrons simulé d'énergie moyenne E_n et de dispersion σ_{E_n}
- $\overline{\sigma_{(n,p)}}$: section efficace de diffusion élastique (n,p) moyenne

d'où l'on tire à partir de l'équation (eq.2.12) le flux de neutrons incidents de référence ϕ_n^{ref} :

$$\phi_n^{ref} = \frac{N_p^{det}}{\overline{\sigma_{(n,p)}} \cdot \epsilon_p^{sim} \cdot N_H \cdot S_H \cdot \Delta t} \quad (2.18)$$

Ce flux de neutrons de référence tient compte, via les simulations, des caractéristiques physiques expérimentales : géométrie, réactions, détecteur et résolution. De cette simulation, on déduit :

- la distribution en énergie des protons détectés.
- la distribution en énergie des neutrons

En pratique, nous allons comparer les spectres de protons expérimentaux aux spectres simulés afin de vérifier que les effets physiques (pertes d'énergie, résolutions, distributions angulaires) permettent de reproduire l'expérience. L'incertitude sur le flux de neutrons se compose, de la même façon que précédemment, d'un terme statistique N_p^{det} qui devra être négligeable par rapport à l'erreur systématique sur le flux. Il est donc primordial de maîtriser tous les paramètres de ϕ_n^{ref} avec une précision comparable à la section efficace (n,p) afin de minimiser l'incertitude sur le flux dans la section efficace de fission $\sigma_{(n,f)}$ (eq.2.1).

2.1.4 Détermination de la section efficace de fission.

La méthode décrite dans la partie précédente doit nous permettre de mesurer précisément des sections efficaces par la grande connaissance sur la diffusion élastique (n,p). Si l'on remplace le flux de neutrons de référence ϕ_n^{ref} (eq.2.18) dans la section efficace de fission (eq.2.1), on obtient la relation suivante :

$$\sigma_{(n,f)}(En) = \left(\frac{N_{(n,f)}}{N_p^{det}} \right) \cdot \left(\frac{\Omega_{n-pp} \cdot N_H \cdot \epsilon_p^{sim}}{\Omega_{n-Am} \cdot N_{Am} \cdot \epsilon_f} \right) \cdot \overline{\sigma_{(n,p)}} \quad (2.19)$$

où

- $N_{(n,f)}$: nombre de fragments de fission de ^{243}Am détectés ;
- Ω_{n-Am} : angle solide sous-tendu par la cible d' ^{243}Am au flux de neutrons ;
- Ω_{n-pp} : angle solide sous-tendu par le support hydrogéné au flux de neutrons ;
- N_{Am} : nombre d'atomes d' ^{243}Am dans la cible par unité de surface (cm^{-2}) ;
- N_H : nombre d'atomes d'hydrogène dans le film mince par unité de surface (cm^{-2}) ;
- ϵ_f : efficacité du détecteur fission ;
- ϵ_p^{sim} : l'efficacité du détecteur protons ;

- $\overline{\sigma_{(n,p)}}$: section efficace de diffusion élastique (n,p) moyenne ;

La section efficace de fission mesurée par rapport à la diffusion (n,p) peut se décomposer en un produit de trois termes :

- le premier correspond au rapport du nombre de fissions et de protons diffusés détectés $\frac{N_{(n,f)}}{N_p^{det}}$. L'erreur statistique qui en dérive doit être minimisée mais elle dépend directement du dispositif expérimental ;
- le second rapport correspond aux quantités relatives au dispositif expérimental. C'est là que se situe la principale source d'incertitude. Une bonne maîtrise de la géométrie du dispositif expérimental s'impose ;
- enfin, la section efficace de diffusion (n,p). De par la méthode, l'incertitude sur cette quantité est l'incertitude minimale des mesures.

Chaque grandeur peut être indépendamment optimisée pour limiter sa contribution à l'erreur totale. Le taux de comptage dépend évidemment du dispositif expérimental. Il est clair que ce dispositif expérimental résulte d'un compromis permettant de réaliser les mesures dans un temps raisonnable et une statistique suffisante. En ce qui concerne la fission, l' ^{243}Am soulève les problèmes suivants :

- la manipulation, c'est un noyau fortement radioactif ($7,4 \text{ kBq}/\mu\text{g}$) ce qui n'est pas sans poser des problèmes de radioprotection ;
- la définition des cibles (diamètres, épaisseurs et supports) : leur épaisseur doit être suffisamment mince pour permettre aux fragments de fission d'atteindre le détecteur. Dans ce type d'expérience, l'épaisseur des cibles ne dépasse pas $0,5 \text{ mg}/\text{cm}^2$. A partir des flux de neutrons que nous produisons au laboratoire et de la section efficace de fission de l' ^{243}Am voisine de 1,5 b, le taux de fission produit dans ce type de cible atteint 1,5 fission/s dans $4\pi \text{ sr}$;
- la détection des fragments de fission : la cible décrite précédemment émet $\sim 10^6 \alpha$ par seconde dans $4\pi \text{ sr}$; le détecteur de fragments de fission doit être capable de résister à un tel taux d'irradiation (auquel s'ajoutent les neutrons), de séparer les fragments de fission des particules α et avec la plus grande efficacité possible ($>50\%$).

A titre indicatif, ces taux de comptage sont à comparer au taux de protons de recul attendu pour la mesure du flux de neutrons. A partir d'un flux de neutrons de 10^6 n/s pour des neutrons de 5 MeV, le taux de protons émis par un film de polypropylène de $50 \mu\text{m}$ d'épaisseur est égal à 600 protons /s. Seule la partie la plus énergétique du spectre de protons (ceux émis à l'avant) est détectée. Pour un détecteur placé à 7 cm du polypropylène avec une ouverture angulaire de $\pm 5^\circ$, le taux de comptage s'élève à 6 protons/s. Ce nombre peut être ramené au flux de neutrons incidents. Il correspond à une efficacité absolue de détection des neutrons de $\sim 6.10^{-6}$.

2.2 Les Curiums - méthode indirecte.

2.2.1 Etat des lieux.

Dans le domaine des neutrons rapides, il existe peu de données nucléaires compte-tenu des difficultés expérimentales. Toutefois dans les années 70, des campagnes de mesures ont été mises en œuvre dans le cadre d'études systématiques des barrières de fission dans la région des actinides, mais aussi dans le but d'améliorer les rendements d'actinides mineurs dans des réacteurs expérimentaux [Mo71]. Si actuellement l'objectif est tout autre, les mesures expérimentales de fission n'en restent pas moins nécessaires pour contraindre les modèles et fournir des données évaluées utiles à la gestion du cycle du combustible. Nous allons faire un bilan des données existantes sur les noyaux que nous étudierons dans la suite de ce travail.

2.2.1.a Mesures $^{242}\text{Cm}(n, f)$

Il s'agit d'un noyau non-fissile. Il n'existe que deux séries de mesures de sections efficaces de fission dans le domaine des neutrons rapides. La première mesure de Vorotnikov et al. [Vo84] décrit la montée de la fission de première chance de 0,13 à 1,39 MeV (fig.2.8). Les neutrons monoénergétiques, produits par un Van de Graaff, irradient $1\text{mg}/\text{cm}^2$ de ^{242}Cm isotopiquement pur. Une seconde série de mesures [Fo67] (section efficace de fission et distributions angulaires des fragments) a été réalisée avec des neutrons de 14,5MeV pour une série d'actinides dont le ^{242}Cm .

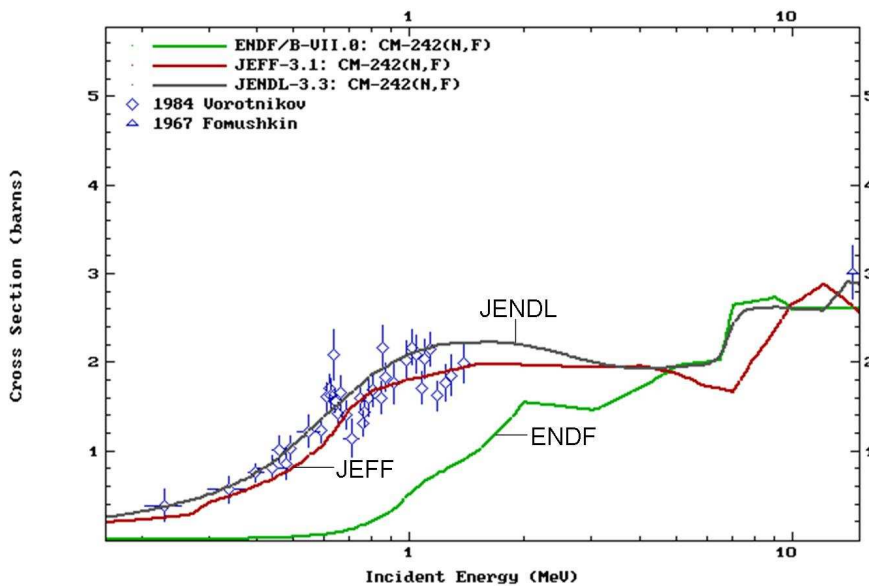


FIG. 2.8 – Section efficace de fission induite par neutrons $^{242}\text{Cm}(n, f)$ [NNDC08].

Entre ces deux jeux de données, aucune mesure par neutrons n'est mentionnée dans

la base de données EXFOR. On remarquera que la bibliothèque ENDF présente un désaccord important avec les données expérimentales et les autres évaluations ; le seuil de fission de première chance apparaît 0,5 MeV plus haut en énergie de neutrons.

2.2.1.b Mesures $^{243}\text{Cm}(n, f)$

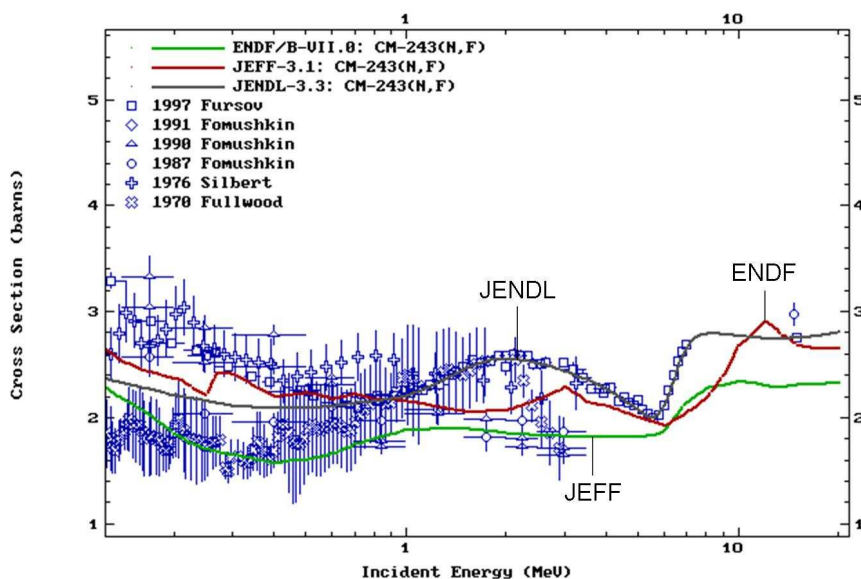


FIG. 2.9 – Section efficace de fission induite par neutrons $^{243}\text{Cm}(n, f)$ [NNDC08].

Plusieurs mesures réalisées depuis les années 70 présentent une grande disparité liée aux difficultés des expériences. Après capture d'un neutron, le noyau formé est pair en nombre de protons et de neutrons, il est donc fissile. Les mesures de sections efficaces dans le domaine des neutrons rapides sont donc délicates. En effet, il faut nécessairement maîtriser la qualité du spectre de neutrons incidents, notamment quantifier la composante thermique du flux de neutrons. On peut distinguer quatre régions :

- sur l'intervalle [0,1 ; 0,4] MeV, il existe deux groupes de données. Le premier groupe composé des mesures de Fullwood et al. [Fu70] et Fomushkin et al. (1987) [Fo87], prévoit une section efficace de fission de l'ordre de 1,8 barns. La mesure de Silbert et al. [Si76], une seconde mesure de Fomushkin et al. en 1991 [Fo91] et dernièrement les données de Fursov et al. [Fu97] proposent une section efficace comprise entre 2,5 et 3 barns.
- sur l'intervalle [0,4 ; 3] MeV, toutes les données se croisent autour de 2 barns avec une dispersion de $\pm 25\%$.
- sur l'intervalle [3 ; 7] MeV, seules les données de Fursov [Fu97] sont disponibles .

- au delà de 7 MeV, deux mesures (à $\sim 14,5 \text{ MeV}$) prévoient une section efficace de 2,9 barns [Fo87] [Fu97].

Les bases de données, s'appuyant sur toutes ou partie de ces données, présentent elles aussi des dispersions importantes.

2.2.1.c Mesures $^{244}\text{Cm}(n, f)$

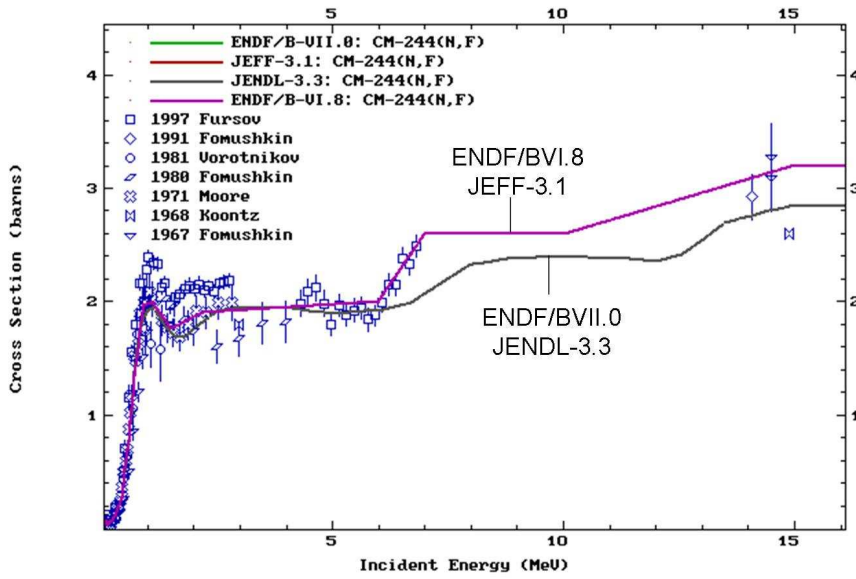


FIG. 2.10 – Section efficace de fission induite par neutrons $^{244}\text{Cm}(n, f)$ [NNDC08].

De même que pour le noyau précédent, plusieurs mesures ont été réalisées au voisinage de la première chance avec des techniques expérimentales différentes. Nous pouvons, à nouveau, découper ce domaine en énergie en trois zones :

- sur l'intervalle $[0,1;4] \text{ MeV}$, les données présentent une dispersion de $\pm 20\%$. Principalement deux techniques ont été utilisées. Les premières données de Fomushkin [Fo80] [Fo91] et Moore [Mo71] utilisent comme source de neutrons une explosion nucléaire. Les fragments de fission sont détectés, respectivement, par un détecteur de traces et deux jonctions silicium (55° et 90°). Ces mesures sont réalisées par rapport à la section efficace de fission de ^{235}U . Deux autres séries de données ont été obtenues à partir d'accélérateurs Van de Graaf : à $E_n = 1 \text{ MeV}$, les mesures de Vorotnikov [Vo81] et Fursov [Fu97] présentent un écart de 40%.
- sur l'intervalle $[4;7] \text{ MeV}$, seules les données de Fursov [Fu97] décrivent la montée de la section efficace de fission de deuxième chance.

- au delà de 7 MeV, quatre mesures autour de 14.5 MeV [Fo80] [Fo91] [Fo67] [Ko87] prévoient le plateau de troisième chance au voisinage de 2,9 barns avec une dispersion de 8%.

2.2.1.d Mesures par réactions de transfert

A toutes ces mesures de sections efficaces induites par neutrons, il faut ajouter les données expérimentales obtenues de manière indirecte par H.C.Britt et J.D. Cramer [Cr70] [Br79] du laboratoire de Los Alamos dans les années 70. Cette méthode indirecte combine la mesure d'une probabilité de fission par réactions de transfert et un calcul de formation de noyau composé. Cette méthode a permis de déterminer les sections efficaces de plusieurs transuraniens (curium) difficilement accessibles par mesures induites par neutrons. Néanmoins, aucune de ces mesures n'apparaît dans les bases de données. Ces dix dernières années, la réactualisation des données pour la transmutation des déchets nucléaires et en particulier des actinides mineurs, a relancé l'intérêt de cette méthode. Plusieurs travaux menés aux Etats Unis et en Europe (CENBG) ont montré le potentiel de cette méthode pour l'étude des noyaux très radioactifs.

2.2.2 Objectif - Principe de la méthode de substitution

L'utilisation de la méthode de substitution repose sur l'idée de s'affranchir de difficultés survenant dans les méthodes traditionnelles. Dans notre cas, la manipulation des radioéléments à vies courtes pose des problèmes de fabrication de cibles, mais aussi de tenue dans le temps au cours de l'expérience. L'objectif est de former à l'aide d'une réaction de substitution un noyau de même charge Z et de même masse $A+1$ que le noyau formé par capture d'un neutron. Cette réaction de substitution est une réaction de transfert ou une diffusion inélastique induite par particules chargées légères. C'est une réaction à deux corps : l'identification de la particule éjectée, la mesure de son énergie et la cinématique permettent de caractériser le noyau de recul formé, en masse ($A+1$), en charge (Z) et en énergie d'excitation E^* (fig.2.11).

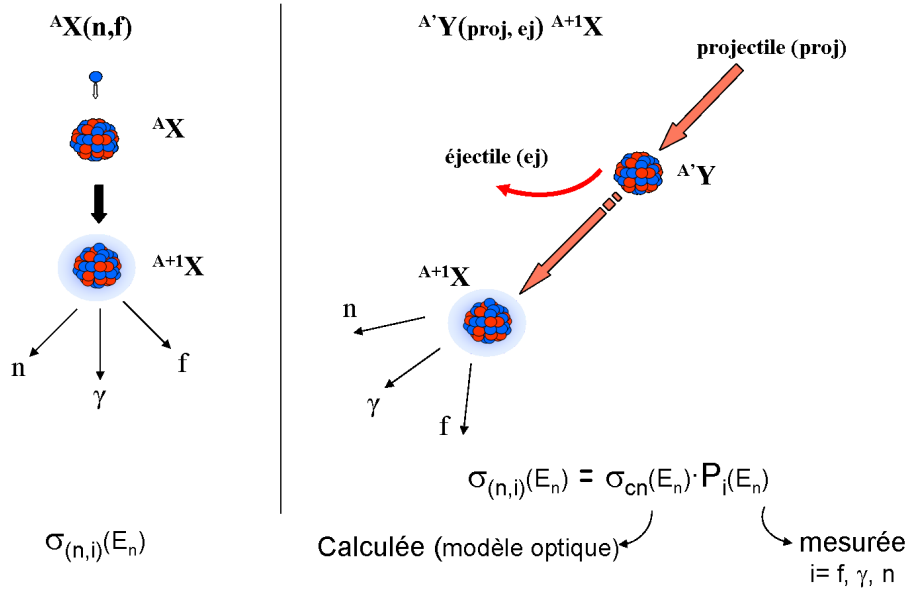


FIG. 2.11 – Principe de la méthode de substitution : l'objectif est de former le noyau $(A+1)$ par une réaction de transfert du type $A'Y(\text{projectile}, \text{ejectile})^{A+1}X$. La détection et l'identification de l'éjectile et la mesure de son énergie signent le noyau formé et son énergie d'excitation.

Expérimentalement, on détecte les particules légères en coïncidence avec une voie de désexcitation du noyau formé. On mesure alors la probabilité P_i de désexcitation dans la voie i (f, γ ou n) du noyau formé $A+1X$. Il s'agit d'une mesure relative : la probabilité est égale au rapport du nombre de désexcitations détectées ($N_{(part \& i)}$) sur le nombre de noyaux formés (N_{part}).

$$P_i(A+1X) = \frac{N_{(part \& i)}}{N_{part}} \quad (2.20)$$

où

- N_{part} est le nombre de particules éjectées signant la formation du noyau $A+1X$;
- $N_{(part \& i)}$ le nombre de coïncidences entre l'éjectile et la désexcitation du noyau $A+1X$ dans la voie i , $i = \{f, \gamma, n'\}$.

Dans le domaine des neutrons rapides ($E_n \in [0, 1; 10]$ MeV) les voies ouvertes sont la capture radiative (P_γ), l'émission d'un neutron ($P_{n'}$), et la fission (P_f). La méthode proposée repose sur les hypothèses suivantes : la désexcitation du noyau lourd de recul est traitée dans le cadre du modèle du noyau composé ; les distributions des moments angulaires peuplées par capture d'un neutron ou réaction de transfert peuvent être différentes ; cet aspect sera détaillé dans les paragraphes suivants (cf.2.2.4). A partir de ces hypothèses, la section efficace de la réaction $\sigma_{(n,i)}$ est obtenue en multipliant la section efficace de formation du noyau-composé $\sigma_{n,nc}^{A+1X}$ par la probabilité de désexcitation P_i (fission ou capture...) :

$$\sigma_{(n,i)}^{A+1X}(E^*) = \sigma_{n,nc}^{A+1X}(E^*) \cdot P_i^{A+1X}(E^*) \quad (2.21)$$

où

- E^* désigne l'énergie d'excitation du noyau ^{A+1}X ;
- $P_i^{A+1}X$ la probabilité de désexcitation dans la voie i , $i = \{f, \gamma, n'\}$;
- $\sigma_{(n,i)}^AX$ la section efficace de la réaction i ;
- $\sigma_{n,nc}^AX$ la section efficace de formation du noyau-composé $(cn) ^{A+1}X$.

Pour la voie fission, cette méthode a été validée par la mesure de nombreux actinides dans la gamme des neutrons rapides [1;10] MeV [Cr70] [Br79] [Yo03-2] et plus récemment par notre groupe avec la mesure de la section efficace de fission du $^{233}\text{Pa}(27j)$ [Pe04]. L'objectif est donc de trouver les réactions de substitution pour former les noyaux de $^{243}\text{Cm}^*$, $^{244}\text{Cm}^*$, $^{245}\text{Cm}^*$ correspondant aux réactions à étudier : $^{242}\text{Cm}(162j) + n$, $^{243}\text{Cm}(29a) + n$, $^{244}\text{Cm}(18a) + n$.

2.2.3 Les méthodes de substitutions existantes

La méthode de substitution utilisée dans ce travail fait appel aux réactions de transfert induites par des ions légers. Ces réactions de transfert sont encore très utilisées dans les études de structure nucléaire ; elles l'ont été et le redeviennent dans le domaine de la fission. Elles sont en outre indispensables dans l'étude des barrières de fission de noyaux fissiles inaccessibles par réaction de fission induite par neutrons. Dans cette partie, nous allons présenter les différentes réactions de substitution et les méthodes mises en œuvre ces dernières années.

2.2.3.a Réactions usuelles

Dans le cadre de notre étude, nous voulons substituer à la réaction $^AX(n, f)^{A+1}X$ une réaction de transfert sur un noyau AY pour former le noyau ^{A+1}X . Plusieurs réactions sont possibles mais elles doivent être adaptées aux nécessités de la mesure : la cible doit être elle-même disponible et le projectile doit être stable et le rester au cours de la réaction (pas d'excitation de la particule éjectée). Nous allons maintenant regarder plus en détail les réactions les plus utilisées dans ce type de mesures :

- Réactions $(^3\text{He}, p)$, $(^3\text{He}, d)$, $(^3\text{He}, t)$, $(^3\text{He}, \alpha)$

Les premières expériences ont été développées par J.D.Cramer et H.C.Britt dans les années 70 [Cr70] pour des études systématiques de la barrière de fission des actinides. Ces études systématiques, pour la plupart menées à Los Alamos, ont permis de rassembler de nombreuses informations sur la barrière de fission des actinides et d'étudier dans le détail les probabilités de fission de première chance ($E^* \lesssim 11 \text{ MeV}$). Ces réactions ont été utilisées plus récemment pour des mesures sur des noyaux à vie courte comme le ^{233}Pa [Pe04] [Bo06] ou ^{236}U [Ly07].

- Réactions (d, p) , (t, p) , (p, t)

Ces réactions correspondent au transfert d'un ou deux neutrons du projectile à la cible ou in-

versement (pick-up). Ce sont donc, à priori, les réactions les plus proches d'une ou plusieurs captures neutroniques (cf [Yo03]). Toutefois, la faible énergie de liaison du deuton ($\sim 2,2\text{MeV}$) est responsable de la cassure (break-up) d'une partie des deutons (incidents) au voisinage du champ coulombien du noyau-cible. Ainsi, la mesure d'une probabilité de réaction (e.g. la fission) est faussée par un taux anormalement élevé de protons. Les sections efficaces de break-up sur des éléments lourds n'étant pas bien connues, elles peuvent générer une erreur supplémentaire non négligeable sur le résultat final. A ce problème, s'ajoutent ceux apportés par la présence de contaminants dans la cible.

- Diffusion inélastique (p, p') , (d, d') , (α, α')

Les réactions (p, p') , (d, d') , (α, α') ont aussi été utilisées dans la région des uraniums, neptuniums et plutoniums, c'est-à-dire avec des noyaux de durées de vie relativement longues [Pl05] [Bu06] [Ly07]. Ces réactions sont difficiles à mettre en œuvre compte tenu de la forte contribution de la diffusion élastique sur la cible (ou du break-up des deutons). Dans notre cas, nous ne disposons pas de cibles de curium permettant l'utilisation de ces réactions.

2.2.3.b Les méthodes d'analyse.

2.2.3.b.1 Mesure "absolue"

Toutes ces mesures par réactions de transfert sont particulièrement sensibles à la pureté isotopique de la cible et au choix de son support. Il s'agit de cibles suffisamment minces pour minimiser les diffusions élastiques sur les éléments de la cible et les pertes d'énergie du faisceau, des éjectiles et des fragments de fission. Un support de carbone de faible épaisseur ($\sim 50 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) est la plupart du temps utilisé. Pour cet élément léger, les réactions de transfert mettent en jeu des états discrets dont la contribution peut être évaluée à partir des mesures complémentaires de bruit de fond :

$$P_f(E^*) = \frac{N_{(part \ \& \ f)}}{(N_{part} - N_{bf}) \cdot \epsilon_f}(E^*) \quad (2.22)$$

où

- $P_f(E^*)$: probabilité de fission en fonction de l'énergie d'excitation (E^*);
- $N_{(part \ \& \ f)}$: nombre de coïncidences {particules légères - fragments de fission} détectées;
- N_{part} : nombre de particules légères détectées;
- N_{bf} : nombre de particules légères détectées correspondant au bruit de fond et provenant du support;
- ϵ_f : efficacité de détection des fragments de fission.

La qualité de la mesure dépend fortement des techniques de fabrication des cibles. La cible idéale correspond à un dépôt métallique fabriqué par évaporation sous vide ou séparation électromagnétique. Ces techniques, en raison de leur faible rendement et de contraintes de radioprotection, ne sont plus utilisées pour fabriquer des cibles de transuraniens. La méthode d'électrodéposition est maintenant la technique la plus utilisée. Malheureusement, celle-ci va induire inévitablement une contamination de la cible avec tous les éléments présents dans la solution de départ (oxygène, azote, carbone ou d'autres éléments). Dans ces conditions, il devient très difficile d'évaluer le nombre relatif de noyaux lourds formés.

2.2.3.b.2 Mesure relative

La présence de contaminants dans les cibles a incité certaines équipes [Ly07] de recherche à développer une technique de mesure relative à un noyau connu. Suivant cette méthode, la section efficace du noyau désiré est dans le rapport R de la section efficace du noyau de référence formé. Ainsi, on a :

$$\sigma_{(n,f)}^{A_1-1X}(E^*) = R(E^*) \cdot \sigma_{(n,f)}^{A_2-1X}(E^*) \quad (2.23)$$

où

- $\sigma_{(n,f)}^{A_1-1X}$: section efficace de fission induite par neutrons du noyau A_1-1X recherché (A_1 correspondant au noyau composé $(A_1 - 1) + n$)
- $\sigma_{(n,f)}^{A_2-1X}$: section efficace de fission induite par neutrons du noyau A_2-1X de référence (A_2 correspondant au noyau composé $(A_2 - 1) + n$)

L'objectif est de déterminer le coefficient R , de manière indirecte en utilisant la même réaction de transfert sur deux noyaux différents. Cette méthode repose sur deux cibles fabriquées selon le même protocole avec deux isotopes différents. Ainsi une voie de réaction de transfert conduit à la formation du noyau souhaité A_1X avec la première cible c_1 ; la seconde cible c_2 forme le noyau de référence A_2X avec la même voie de transfert. Dans l'hypothèse de la formation des noyaux composés A_1X et A_2X , on peut décrire R par la relation :

$$R(E^*) = \frac{\sigma_{(n,f)}^{A_1-1X}(E^*)}{\sigma_{(n,f)}^{A_2-1X}(E^*)} = \frac{\sigma_{(n,cn)}^{A_1X} \cdot P_f^{A_1X}}{\sigma_{(n,cn)}^{A_2X} \cdot P_f^{A_2X}}(E^*) \quad (2.24)$$

$$R(E^*) = \frac{\sigma_{(n,cn)}^{A_1X}}{\sigma_{(n,cn)}^{A_2X}}(E^*) \cdot \frac{N_{(part \ \& \ f)}^{c_1}}{N_{(part \ \& \ f)}^{c_2}}(E^*) \cdot F_{norm} \quad (2.25)$$

où

- $\sigma_{(n,cn)}^{A_iX}$: section efficace de formation du noyau-composé A_i , $i = 1, 2$ par capture d'un neutron ;

- $P_f^{A_i X}(E^*)$: probabilité de fission du noyau A_i en fonction de l'énergie d'excitation (E^*);
- $N_{(part \& f)}^{c_i}$: nombre de coïncidences {particule légère - fragments de fission détectés} pour la cible c_i , $i = 1, 2$.
- F_{norm} : facteur de normalisation entre les deux expériences, fonction du nombre de réactions.

En principe, le facteur de normalisation est déduit du nombre de particules légères détectées de chaque mesure. Pour s'affranchir du problème posé par les réactions sur les contaminants légers, la normalisation est obtenue par les temps d'irradiation des cibles, les intensités des faisceaux et les quantités de matière déposée. Pour des isotopes voisins, les sections efficaces de formation des noyaux composés A_1 et A_2 sont supposées proches. La quantité R se simplifie pour donner :

$$R(E^*) \approx \frac{N_{(part \& f)}^{c_1}}{N_{(part \& f)}^{c_2}}(E^*) \cdot F_{norm} \quad (2.26)$$

Cette méthode a été mise en pratique pour mesurer des sections efficaces de fission sur ^{236}U [Pl05] [Ly07] et ^{237}U [Bu06]; J.E. Escher et F.S.Dietrich ont étudié la validité de cette méthode [Es06].

2.2.4 Les limites de la méthode de substitution

La méthode de substitution permet de mesurer la probabilité de fission des noyaux d'intérêt. Dans cette partie, nous allons définir la validité du passage de la probabilité de fission à la section efficace de fission induite par neutrons (eq.2.21). Pour des neutrons d'énergie inférieure à 10 MeV, la capture d'un neutron conduit à la formation d'un noyau composé. On peut alors décrire la section efficace de fission induite par neutrons d'un noyau A par les relations suivantes :

Hypothèse du noyau composé (cn) :

$$\sigma_{(n,f)}^A(E_n) = \sum_{j,\pi} \sigma_{(n,cn)}^A(E^*, j, \pi) \cdot P_f^{A+1}(E^*, j, \pi) \quad (2.27)$$

$$\sigma_{(n,cn)}^A(E_n) = \sum_{j,\pi} \sigma_{(n,cn)}^A(E^*, j, \pi) \quad (2.28)$$

$$\sigma_{(n,f)}^A(E_n) = \sigma_{(n,cn)}^A(E_n) \sum_{j,\pi} \frac{\sigma_{(n,cn)}^A(E^*, j, \pi) \cdot P_f^{A+1}(E^*, j, \pi)}{\sigma_{n,cn}^A(E_n)} \quad (2.29)$$

$$\text{avec} \quad E^* = \frac{A}{A+1} \cdot E_n + B_n$$

où

- $\sigma_{n,f}^A(E_n)$: section efficace de fission induite par neutrons d'énergie (E_n) du noyau A ;

- $\sigma_{n,cn}^A(E^*)$: section efficace de formation du noyau composé à l'énergie E^* du noyau A ;
- $P_x^{A+1}(E^*, j, \pi)$: probabilité de fission de l'état (E^*, j, π) du noyau A+1. Pour un noyau composé, cette quantité se définit comme le rapport de la largeur partielle de fission Γ_f sur la largeur partielle de désexcitation du noyau composé Γ_T .
- B_n : énergie de liaison des neutrons du noyau A+1 ;

La probabilité de fission à l'énergie d'excitation E^* et la section efficace de fission se réécrivent :

$$\sigma_{(n,f)}(E_n) = \sigma_{(n,cn)}(E_n) \cdot P_{n,f}^{A+1}(E^*) \quad (2.30)$$

$$\text{avec } P_{n,f}^{A+1}(E^*) = \sum_{j,\pi} f_{(n,cn)}^{A+1}(E^*, j, \pi) \cdot P_f^{A+1}(E^*, j, \pi) \quad (2.31)$$

où

- $P_{n,f}^{A+1}(E^*)$ est la probabilité de fission du noyau A+1 induite par neutrons à l'énergie d'excitation E^* ;
- $f_{n,cn}^{A+1}(E^*, j, \pi)$ est la distribution des états de spin-parité (j, π) peuplés du noyau composé (cn) A+1 induit par neutrons.

En revanche, les réactions de transfert correspondent à des échanges de nucléons en périphérie de noyau, dans un mécanisme tout autre que le noyau composé. Toutefois, rappelons qu'il s'agit de réactions de transfert dans le continuum d'états du noyau lourd de recul dont l'énergie se situe au-delà de 5 MeV. Si la réaction de transfert alimente des états complexes de ce noyau, ceux-ci sont fortement couplés aux états composés sous-jacents de ce noyau. Cette hypothèse est renforcée par le fait que les spectres de particules légères associés aux réactions de transfert sur ces noyaux lourds ne présentent pas de structure lorsque l'énergie d'excitation est supérieure à 5 MeV. A partir de là, la désexcitation du noyau lourd de recul est traitée dans le cadre du noyau composé. La probabilité de fission s'écrit alors :

$$P_{Tf}^{A+1}(E^*) = \sum_{j,\pi} f_T^{A+1}(E^*, j, \pi) \cdot P_f^{A+1}(E^*, j, \pi) \quad (2.32)$$

où

- $P_{Tf}^{A+1}(E^*)$ est la probabilité de fission induite par réactions de transfert à l'énergie d'excitation E^* ;
- $f_T^{A+1}(E^*, j, \pi)$ est la distribution de probabilité des états de spin-parité (j, π) peuplés du noyau A+1 induite par réactions de transfert.

Les probabilités de fission associées à la capture d'un neutron et à la réaction présentent la même structure. Pour un état quantique (E^*, j, π) du noyau composé, la quantité $P_f^{A+1}(E^*, j, \pi)$ ne

dépend pas du mécanisme de réaction. En revanche, on peut penser que les distributions de spin et de parités de ces états quantiques ne sont pas nécessairement identiques. Le spin et la parité des états du noyau composé de recul, (j, π) , vont dépendre du spin de la cible (I_0), du spin (S) de la particule transférée et du moment angulaire transféré par celle-ci (l). La figure (fig.2.12-gauche) présente pour trois réactions de transfert la distribution de ces moments orbitaux. On notera des différences notables dans ces distributions à la fois dans les valeurs les plus probables et dans les moments angulaires maximaux que l'on peut peupler dans ces réactions. La valeur la plus probable se situe entre 3 et 5 \hbar . En revanche, de telles valeurs du moment angulaire sont obtenues pour des énergies de neutrons supérieures à 2 MeV.

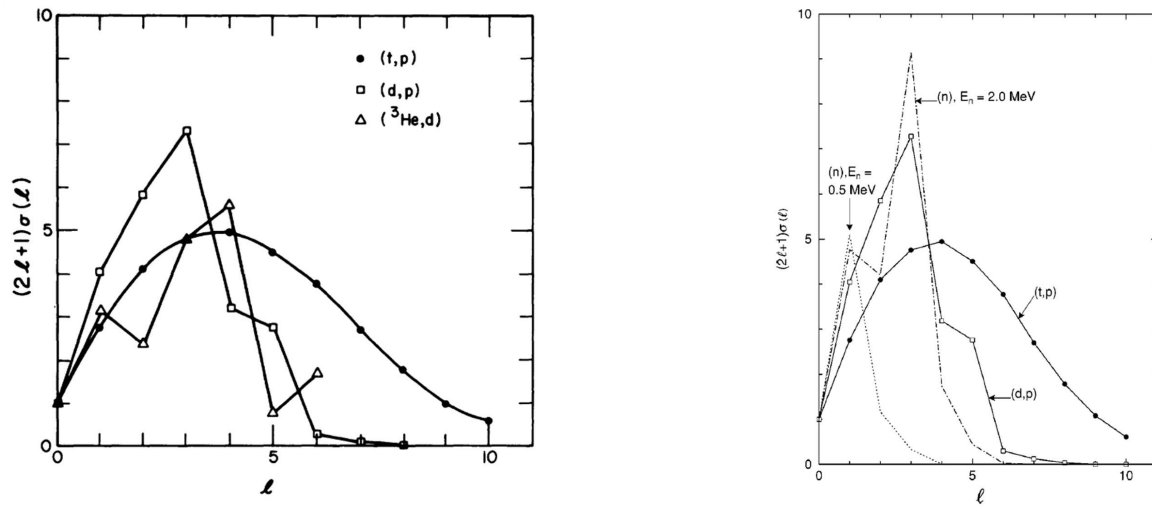


FIG. 2.12 - Figure de gauche : distribution des moments transférés l (à 90° et $E^* = 5,5 \text{ MeV}$) en fonction des réactions de transfert (t,p) , (d,p) , et $(^3\text{He},d)$ [Ba74].

Figure de droite : Comparaison des distributions des moments transférés l en fonction des réactions induites par neutrons ($E_n=0,5 \text{ MeV}$ et $E_n=2 \text{ MeV}$) et des réactions de transfert (t,p) , (d,p) [Yo03-2].

Il est clair que les populations de moments angulaires peuvent être différentes pour les deux types de réactions. Les effets de moments angulaires peuvent jouer un rôle non négligeable lorsque l'énergie d'excitation E^* est proche des barrières de fission (autour de 6 MeV), et donc au voisinage du seuil de fission. On sait qu'au voisinage de ce seuil, le nombre de voies de fission se limite à trois ou quatre états quantiques. Ce sont les états de transition proposés par A.Bohr et mis en évidence expérimentalement à partir de la photofission et des mesures de sections efficaces induites par neutrons. A cause de l'énergie d'appariement, ces états de transitions jouent un rôle prépondérant pour les noyaux fissionnant pair-pair et impair, ou plus faiblement pour les noyaux impair-impair. L'analyse des barrières de fission montre que cette énergie d'appariement (pour les noyaux pair-pair) est voisine de 1,5 MeV. A partir d'une énergie de liaison du neutron de l'ordre

de 6 MeV, il est raisonnable de penser que pour des énergies de neutrons incidents comprises entre 0 et 2 MeV, la contribution de ces états de transition va dépendre de la manière dont on les a alimentés. Ces effets sont illustrés à partir de la figure extraite du récent travail de W.Younes et H.C.Britt [Yo03].

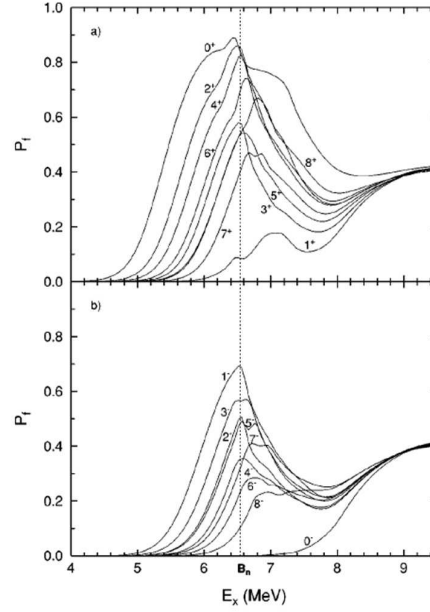


FIG. 10. Best-fit values of the individual fission probabilities $P_f(E_x, J^\pi)$, as a function of excitation energy E_x of the compound nucleus. The positive-parity probabilities are plotted in panel (a), while the negative-parity ones are shown in panel (b). The dotted vertical line indicates the neutron-binding energy value.

FIG. 2.13 – Probabilité de fission évaluée de $l'^{236}\text{U} + n$ en fonction de l'énergie d'excitation pour chaque valeur de spin-parité (J^π) peuplée [Yo03-2]. On constate que la sélectivité en moment angulaire s'estompe au-delà de $E_n = 1$ MeV ($E^* \approx B_n + E_n$).

La probabilité de toutes les voies de fission du noyau composé ont été calculées de part et d'autre de l'énergie de liaison d'un neutron dans le noyau fissionnant. Pour les deux parités, ces probabilités de fission dépendent fortement du moment angulaire. Néanmoins, ces probabilités de fission convergent vers une valeur unique au-delà d'une énergie équivalente de neutrons de 2 MeV. Les effets des états de transition ont été récemment mis en évidence à partir de la mesure relative des probabilités des noyaux d' ^{237}U ($^{238}\text{U}(^3\text{He}, \alpha f)^{237}\text{U}$) et d' ^{234}U ($^{235}\text{U}(^3\text{He}, \alpha f)^{234}\text{U}$). La figure (fig.2.14-b) présente la section efficace de la réaction $^{236}\text{U}(n, f)$ déduite de ces mesures et sa comparaison avec l'évaluation ENDF/BVII. Au-dessous de 3 MeV, cette mesure relative est en complet désaccord avec cette évaluation.

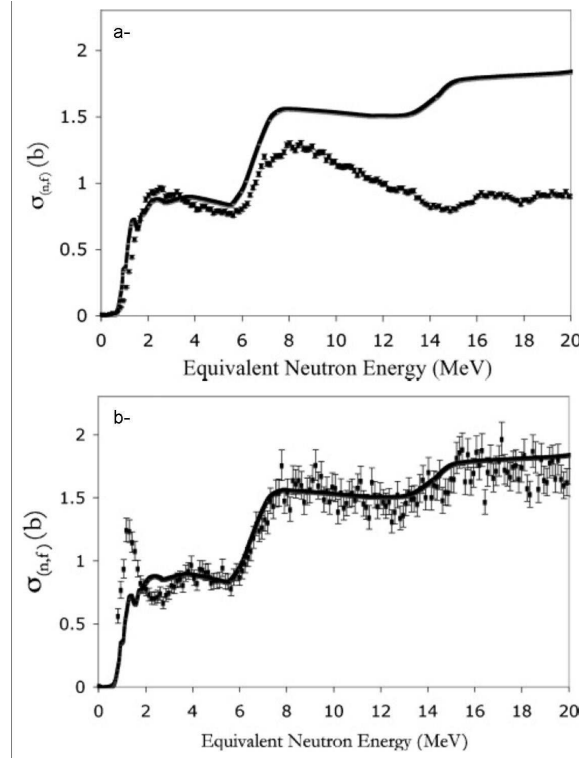


FIG. 2.14 – Section efficace de fission de ^{236}U [Ly07]. Le graphique (a) montre les résultats obtenus par la méthode "absolue" en comparaison à l'évaluation ENDF/B – VII : $^{238}\text{U}(^3\text{He}, \alpha f)^{237}\text{U}$ (cf.eq.2.21 & 2.22). Le graphique (b) présente la même section efficace obtenue par la méthode "ratio" en référence à la même évaluation : $\frac{^{238}\text{U}(^3\text{He}, \alpha f)^{237}\text{U}}{^{235}\text{U}(^3\text{He}, \alpha f)^{234}\text{U}} \cdot \sigma_{(n,f)}^{233\text{U}}$.

L'interprétation de ce désaccord n'est pas sans ambiguïté. L'effet des états de transition est ici renforcé par le fait que la probabilité de fission de ^{237}U (pair-impair) est mesurée relativement à celle de ^{234}U (pair-pair). A ceci s'ajoute que le spin du noyau cible joue un rôle important dans la formation de ces états de transition. La réaction directe ($^{236}\text{U} + n$) fait intervenir un spin 0^+ alors que les réactions de substitutions utilisées dans ce travail [Ly07] font intervenir les noyaux d' $^{235}\text{U}(7/2^-)$ et d' $^{238}\text{U}(0^+)$. Ceci montre les limites de la mesure relative de probabilité de fission puisque s'il y a influence du moment angulaire, on multiplie cet effet à partir de deux réactions de transfert où les noyaux mis en jeu présentent eux-même des moments angulaires très différents ($7/2^-$ et 0^+). En revanche, la mesure de la section efficace de la réaction $^{236}\text{U}(n, f)$ réalisée par les mêmes auteurs à partir de la mesure de la probabilité de fission absolue de ^{237}U ($^{238}\text{U}(^3\text{He}, \alpha f)^{237}\text{U}$) présente un bon accord avec l'évaluation de la première chance de fission. Une déviation apparaît au-delà de 6 MeV. Les auteurs attribuent cette déviation à la mauvaise identification de la voie de réaction $^{238}\text{U}(^3\text{He}, \alpha f)^{237}\text{U}$ et à une délicate soustraction du bruit de fond provenant de traces d'oxygène et de carbone. Il est raisonnable de

penser qu'au-delà d'une énergie de neutrons de 2 à 3 MeV, l'influence du moment angulaire est atténuée pour devenir négligeable. La probabilité de fission devient proportionnelle au rapport Γ_f/Γ_n , c'est-à-dire au rapport de deux densités de niveaux peu différentes et dont la dépendance en moment angulaire s'annule au premier ordre. On atteint la limite de Weisskopf-Ewing de la théorie Hausser-Feshbach :

$$P_f(E^*, j, \pi) \sim P_f(E^*) \quad (2.33)$$

$$\sigma_{(n,f)}(E_n) = \sigma_{n,cn}(E_n) \cdot P_{f,we}(E^*) \sum_{j,\pi} f_{n,cn}(E^*, j, \pi) \quad (2.34)$$

$$\sigma_{(n,x)-we}(E_n) = \sigma_{n,CN}(E^*) \cdot P_{f,we}(E^*) \quad (2.35)$$

où

- $P_{f-we}(E^*)$: probabilité de fission par neutrons dans l'hypothèse de Weisskopf-Ewing à l'énergie d'excitation E^* .
- $\sigma_{(n,x)-we}$: section efficace de fission induite par neutrons dans l'hypothèse de Weisskopf-Ewing.

En résumé, les mesures induites par réactions de transfert présentent au seuil de fission une sensibilité aux distributions des états peuplés. A plus haute énergie d'excitation, la présence de contaminants légers est gênante pour une mesure absolue de probabilité de fission. Toutefois, cette technique est essentielle pour étudier les noyaux inaccessibles par d'autres méthodes expérimentales.

2.3 Principe de notre méthode

Dans les paragraphes précédents, nous avons présenté les différentes réactions et méthodes utilisées pour mesurer des sections efficaces de fission de manière indirecte. Il en ressort que la méthode relative nécessite l'utilisation de deux cibles de curium qui ne sont pas disponibles du fait de leur activité. De même, les réactions par diffusion inélastique ou la réaction (d,p) ne permettent pas d'étudier les isotopes de cet élément. En revanche, les isotopes ^{241}Am et ^{243}Am permettent, par transferts d'un proton ou d'agrégats plus lourds, d'atteindre les isotopes du curium que nous voulons étudier. Nous avons pu obtenir des cibles d' ^{243}Am plus faciles à manipuler que le curium. A partir d'un projectile de type ^3He , nous avons pu montrer [Pe04] que les taux de comptage des particules de chaque voie étaient raisonnables. Ces réactions sont illustrées sur la figure (fig.2.15). Les trois noyaux fissionnants de ^{245}Cm , ^{244}Cm et ^{243}Cm sont formés respectivement par transfert d'un proton et d'un neutron, d'un proton et par échange de charges. A ceci s'ajoute la voie ($^3\text{He}, \alpha$) pour former le noyau d' ^{242}Am . Cette réaction de substitution donne accès à la réaction $^{241}\text{Am}(n, f)$, bien connue dans la littérature.

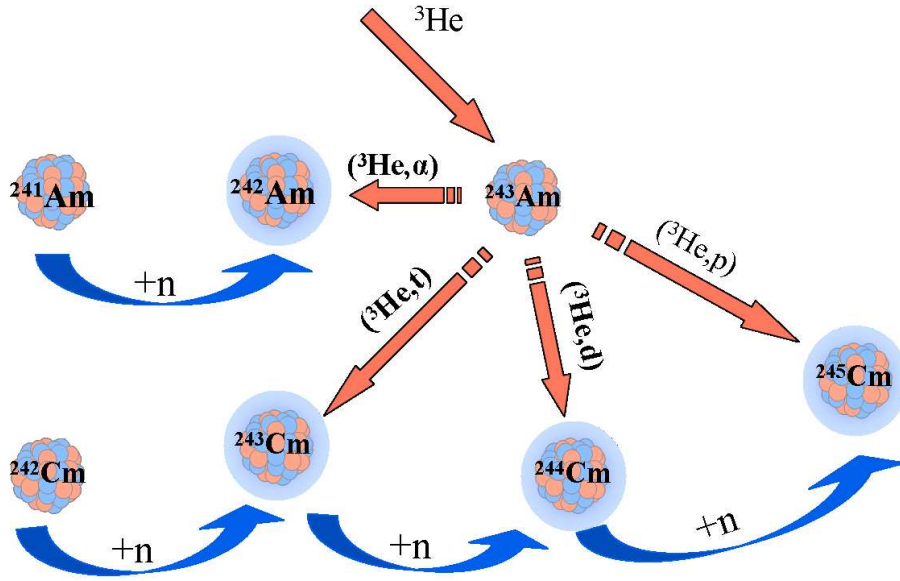


FIG. 2.15 – Réactions de transfert sur $l^{243}\text{Am}$ produisant les noyaux de $^{243,244,245}\text{Cm}$ et $d^{242}\text{Am}$. Les probabilités de fission permettent de déduire les sections efficaces de réaction de fission induite par neutrons sur les $^{242,243,244}\text{Cm}$ et sur $l^{241}\text{Am}$.

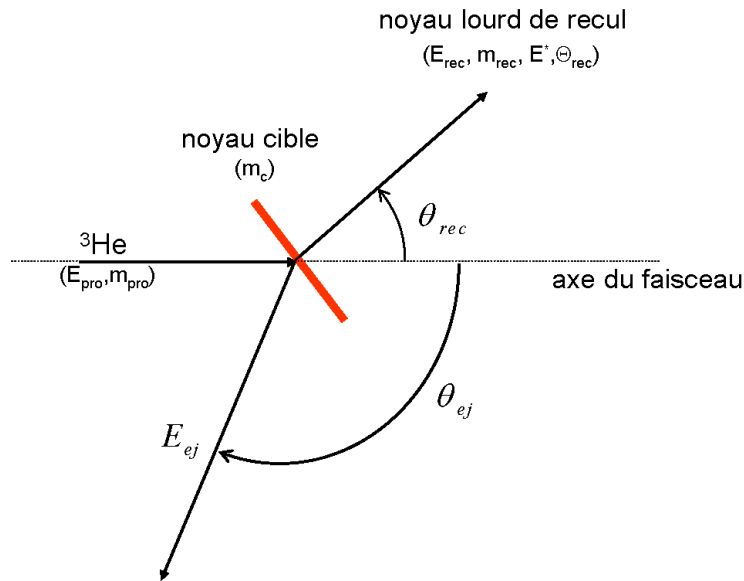


FIG. 2.16 – Schéma cinématique des réactions de transfert.

Toutes ces réactions sont des réactions à deux corps. La conservation de l'énergie permet d'exprimer l'énergie d'excitation E^* en fonction des énergies du projectile (E_{pro} , m_{pro}), de

l'éjectile (E_{ej} , m_{ej}) et du noyau de recul (E_{rec} ; m_{rec}) (fig.2.16) :

$$E^* = E_{pro} - E_{ej} - E_{rec} + Q \quad (2.36)$$

$$Q = (m_{pro} + m_c - m_{ej} - m_{rec}) \cdot c^2 \quad (2.37)$$

où

- Q est la chaleur de réaction
- m_{pro} est la masse du projectile d'énergie cinétique E_{pro}
- m_c est la masse du noyau cible
- m_{ej} est la masse de la particule éjectée d'énergie cinétique E_{ej}
- m_{rec} est la masse du noyau de recul d'énergie cinétique E_{rec}
- c est la vitesse de la lumière

La conservation de l'impulsion (non-relativiste) permet d'exprimer l'énergie du noyau de recul en fonction du projectile et de la cible :

$$\vec{P}_{rec} = \vec{P}_{pro} - \vec{P}_{ej} \quad (2.38)$$

où \vec{P}_{pro} , \vec{P}_{ej} et \vec{P}_{rec} sont respectivement les impulsions du projectile, de l'éjectile et du noyau de recul. On en déduit la relation liant l'énergie d'excitation du noyau de recul en fonction de l'énergie cinétique du projectile et de l'éjectile uniquement :

$$E^* = E_{pro} + Q - E_{ej} - \frac{1}{m_{rec}} \left(m_{pro} \cdot E_{pro} + m_{ej} \cdot E_{ej} - 2 \cdot \sqrt{(m_{pro} \cdot E_{pro} \cdot m_{ej} \cdot E_{ej})} \cos(\theta_{ej}) \right) \quad (2.39)$$

où θ_{ej} est l'angle d'émission de l'éjectile.

De la même façon, on peut déduire l'angle d'émission du noyau de recul, θ_{rec} , par conservation de l'énergie et de l'impulsion :

$$\theta_{rec} = \arcsin \left(\sqrt{\frac{m_{ej} \cdot E_{ej}}{m_{rec} \cdot E_{rec}}} \sin(\theta_{ej}) \right) \quad (2.40)$$

Le noyau de recul formé est identifié en énergie d'excitation, en charges et en masse par la particule légère, celle-ci étant suffisamment légère pour ne pas être dans un état excité. Nous allons mesurer la probabilité de fission de ce noyau en fonction de son énergie d'excitation qui est reliée à l'énergie de neutrons via la relation :

$$E^* = \frac{A}{A+1} \cdot E_n + B_n \quad (2.41)$$

où B_n est l'énergie de liaison des neutrons pour le noyau A+1 formé.

Suivant l'équation (eq.2.39), l'énergie d'excitation (E^*) du noyau lourd formé est fonction de l'énergie de la particule éjectée et de la masse du noyau de recul. La figure (fig.2.17) présente le schéma de principe de notre dispositif. On remarquera que les particules légères sont détectées aux angles arrière pour ne pas favoriser certaines valeurs du moment orbital (l) et réduire l'influence des transferts sur les noyaux légers présents dans la cible. En ce sens, ces choix diffèrent de ceux faits outre-atlantique [Bu06].

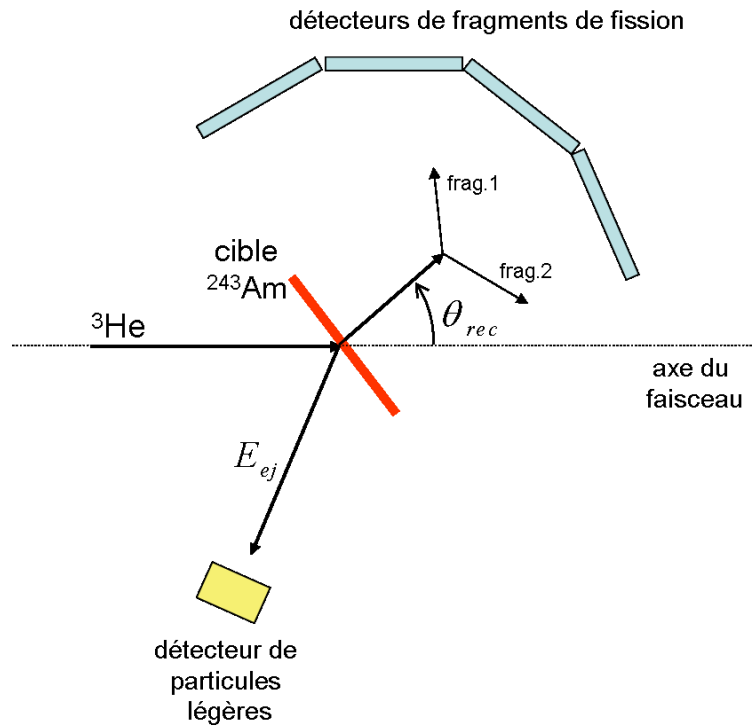


FIG. 2.17 – Schéma de principe du dispositif de mesures par réactions de transfert.

Conclusion

Dans la première partie de ce chapitre, nous avons présenté la méthode choisie pour répondre à la problématique de la section efficace de fission de l' ^{243}Am dans le domaine des neutrons rapides. L'état des lieux sur les mesures existantes a révélé la nécessité de confronter les méthodes expérimentales et les réactions de références. L'évaluation des erreurs propres à la méthode choisie est indispensable pour comprendre les écarts systématiques des mesures existantes. Dans le chapitre 3, nous décrirons le dispositif expérimental et l'analyse des données des différentes mesures réalisées à l'IRMM et au CENBG.

La seconde partie de ce chapitre s'est intéressée à la thématique des noyaux très instables et difficiles à manipuler. Des méthodes de substitutions permettent alors d'obtenir indirectement l'information souhaitée. Même si la précision accessible de ces données est limitée par le principe de la méthode, cette technique apporte des données parfois inédites en raison des difficultés à réaliser des mesures directes. Le dispositif expérimental et l'analyse des données seront présentés dans le chapitre 4.

Au final, nous aborderons la mesure de sections efficaces de fission par deux méthodes différentes mais complémentaires. La confrontation des méthodes en regard à la structure des noyaux cibles, nous permettra de discuter de l'impact des mécanismes de réactions sur l'observable mesurée à travers la voie $^{241}\text{Am}(n, f)$.

Chapitre 3

Mesure de la section efficace de fission de l' ^{243}Am .

Dans le chapitre 2, nous avons établi les raisons pour lesquelles la mesure de section efficace induite par neutrons nécessite une connaissance précise de la réaction de référence. Nous allons voir que la caractérisation du dispositif est le deuxième pas à franchir pour définir le résultat. Cette phase passe par la description des mesures et des erreurs de chaque terme apparaissant dans l'expression de cette section efficace, la discussion sur la validité des approximations, et, pour finir, par la propagation des liens systématiques entre les différentes mesures réalisées qui s'expriment en termes de covariances.

L'objectif est d'obtenir une description de la section efficace de fission de l' ^{243}Am indépendante des mesures existantes afin de répondre à l'ambiguïté des mesures au niveau de la première chance de fission. Ce travail est dans le prolongement des connaissances acquises par le groupe ACEN du CENBG durant le travail de thèse de Cédric Grosjean [Gr05] sur la mesure de la section efficace de l' ^{233}U en référence à la diffusion élastique (n,p).

Ce chapitre sera composé en cinq temps : tout d'abord la description et la caractérisation du dispositif ; puis l'analyse des données et des erreurs. Nous discuterons alors de l'ensemble des résultats obtenus au regard des mesures et évaluations existantes. Dans un dernier temps, nous présenterons une analyse statistique des différentes sections efficaces des réactions ouvertes dans la gamme des neutrons rapides.

3.1 Dispositif expérimental.

3.1.1 Production de neutrons quasi-monoénergétiques

Les neutrons utilisés dans ces expériences sont obtenus par bombardement de cibles de tritium ou de deutérium par des protons ou des deutons. Les énergies de projectiles sont ajustées pour produire les neutrons à partir des réactions $T(p, n)^3\text{He}$ et $D(d, n)^3\text{He}$. Ce sont des réactions à deux corps dans lesquelles l'énergie des neutrons est parfaitement définie par les conditions d'irradiation. Ce régime correspond à la production de neutrons quasi-monoénergétiques. Ceci est strictement vrai pour des énergies de projectiles inférieures à 4,5 MeV et à 8 MeV pour les réactions respectives $T(p, n)^3\text{He}$ et $D(d, n)^3\text{He}$. Au-delà de ces énergies, les réactions parasites $T(p, np)D$ et $D(d, np)D$ sont énergétiquement possibles et génèrent un spectre continu de neutrons. On a pu remarquer que les réactions utilisées font intervenir des corps gazeux (tritium et deutérium). Deux types de conditionnement ont été utilisés sous la forme de cibles solides ou gazeuses.

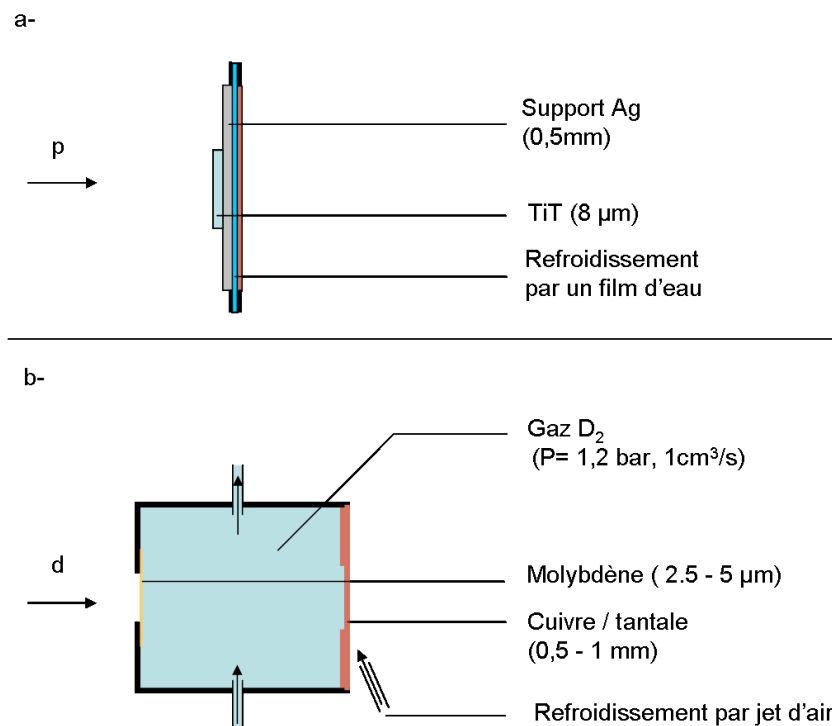


FIG. 3.1 – schémas de principe de la cible solide (a) et des cibles gazeuses (b)

- Cibles solides

Le tritium et le deutérium sont piégés dans un dépôt de titane ($0,9 \text{ mg/cm}^2$) déposé sur un support de cuivre (épaisseur 1 mm) ou d'argent (épaisseur 0,5 mm) (cf. fig.3.1-a). Selon le constructeur de ces cibles, le rapport du nombre d'atomes de tritium ou de deutérium sur le nombre d'atomes de titane est voisin de 1,5. Néanmoins, les supports des cibles (Cu, Ag et Ti) peuvent être eux-mêmes des sources de neutrons parasites. C'est particulièrement le cas pour le titane. Les réactions en cause, $^{47,48,49,50}\text{Ti}(p,n)^{47,48,49,50}\text{V}$ (cf. tab.3.1), produisent un fond continu qui représente 20% des neutrons produits par bombardement du support de titane par des protons de 4,9 MeV. La présence d'oxygène dans le support de titane est à l'origine d'une autre source de neutrons en plus de la réaction $D(d,n)^3\text{He}$. Elle correspond à la réaction $^{16}\text{O}(d,n)^{17}\text{F}$ ($Q=-1,6 \text{ MeV}$). A $E_d = 2,4 \text{ MeV}$, la section efficace totale de cette réaction est deux à trois fois plus importante que la réaction $D(d,n)^3\text{He}$ à cette même énergie. C'est pour éliminer cette réaction parasite que nous avons utilisé une cible gazeuse.

- Cibles gazeuses

Ce type de cible a été utilisé pour le deutérium. Il s'agit d'une enceinte de faible volume placée en bout de ligne d'accélérateur (cf. fig.3.1-b). Dans l'intervalle $[3,6; 8] \text{ MeV}$, deux cibles de deutérium gazeux, construites sur le même principe, ont été utilisées à Geel ou à Bordeaux. Une feuille de molybdène de 2,5 à 5 μm d'épaisseur permet de séparer le vide de l'accélérateur ($P = 10^{-6} \text{ mbar}$) de la chambre remplie de deutérium ($P \sim 1 \text{ bar}$). Cette solution a été choisie en raison de la grande résistance mécanique des feuilles de molybdène. L'épaisseur est choisie afin de minimiser leur impact sur la qualité du faisceau de deutons. Ces feuilles sont vendues par Goodfellow's avec une incertitude de 20% sur l'épaisseur de ces dernières. Dans le but de contraindre cette incertitude, une mesure par perte d'énergie de particules α a été réalisée. Pour limiter la dispersion angulaire et en énergie, la feuille de molybdène est placée en position intermédiaire entre la source et une jonction silicium. Ainsi, les particules α sont en incidence quasi-normale à la feuille et seuls les rayonnements émergeant avec un angle inférieur à 5° peuvent être détectés. En utilisant le programme de perte d'énergie Lyse [Lise], la perte d'énergie des particules alpha fournit les épaisseurs des feuilles de molybdène utilisées. Ainsi, les fenêtres utilisées à Bordeaux font une épaisseur de 2,7 μm et 4,6 μm avec une incertitude de l'ordre de 5%.

Le fond de ces chambres gazeuses (beam stop) est réalisé en tantale ou en cuivre, matériaux inertes aux deutons et aux neutrons incidents. Le deutérium est renouvelé et régulé à une pression voisine de 1,2 bar afin de limiter l'intrusion d'oxygène. Les profondeurs des chambres de deutérium sont respectivement de 29 mm et 40 mm au CENBG et à l'IRMM pour un diamètre utile de 30 mm. Ces dimensions restent faibles devant le libre parcours moyen d'un deuton ou d'un neutron dans le volume sensible. Le faisceau de deutons est légèrement défocalisé ($4 \times 4 \text{ mm}^2$)

pour éviter un échauffement de la fenêtre d'entrée (7 mm de diamètre) et du fond de la cible. Pour les cibles gazeuses, le fond de cible est refroidi par jet d'air.

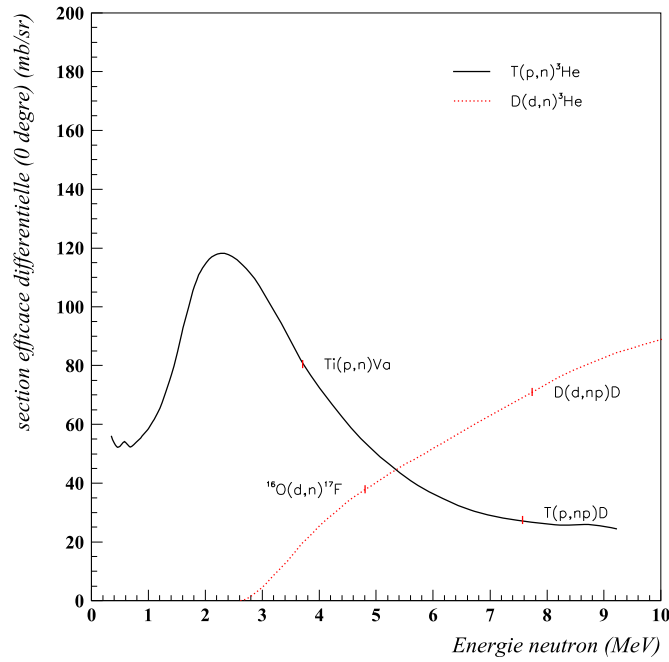


FIG. 3.2 – Sections efficaces différentielles à 0° pour les réactions $T(p,n)^3\text{He}$ et $D(d,n)^3\text{He}$ [Li73].

Pour toutes ces réactions, la production de neutrons est fortement piquée dans la direction du faisceau incident. C'est dans cette direction (à 0°) que nous avons placé notre dispositif de mesure. La figure (fig.3.2) montre pour les réactions utilisées les sections efficaces différentielles à 0° en fonction de l'énergie des neutrons. Le tableau (tab.3.2) présente les domaines de production de neutrons monoénergétiques en fonction des réactions et des cibles utilisées.

réactions utiles	Q MeV	
$T(p, n)^3He$	-0,763	
$D(d, n)^3He$	3,268	
réactions parasites cibles solides	Q MeV	
$^{46}Ti(p, n)^{46}V$	-7,833	
$^{47}Ti(p, n)^{47}V$	-3,710	
$^{48}Ti(p, n)^{48}V$	-4,794	
$^{49}Ti(p, n)^{49}V$	-1,384	
$^{50}Ti(p, n)^{50}V$	-2,990	
$^{16}O(d, n)^{17}F$	-1,624	
Break-up	$E_{p/d}^{seuil}$ (MeV)	E_n (MeV)
$T(p, np)D$	8,35	7,38
$D(d, np)D$	3,268	7,75

TAB. 3.1 – Chaleurs de réactions et seuils d'ouverture des différentes réactions d'intérêts et parasites.

cible solide de tritium (TiT)					
Energie protons E_p (MeV)	$1,02 < E_p < 4,4$	4,9	5,4	6,9	8,35
Energie neutrons E_n (MeV)	$0 < E_n < 3,6$	4,1	4,6	5,1	7,38
Réaction(s) ouverte(s)	$T(p, n)^3He$	$T(p, n)^3He; Ti(p, n)V$			
Spectre de neutrons	monoénergétiques	non-monoénergétiques			
Neutrons parasites	$\leq 0,5\%$	20%	45%	59%	-
cible solide de deutérium (TiD)					
Energie deutons E_d (MeV)	$0,02 < E_d < 1,6$	$1,6 < E_d < 4,45$			
Energie neutrons E_n (MeV)	$2,6 < E_n < 4,8$	$4,8 < E_n < 7,75$			
Réaction(s) ouverte(s)	$D(d, n)^3He$	$D(d, n)^3He; {}^{16}O(d, n){}^{17}F$			
Spectre de neutrons	monoénergétiques	non-monoénergétiques			
Neutrons parasites	-	$< 70\% \text{ }^1$			
cible gazeuse de deutérium (D_2)					
réaction	$D(d, n)^3He$				
spectre de neutrons	monoénergétiques				
neutrons parasites	-				

TAB. 3.2 – Plage de production de neutrons quasi-monoénergétiques en fonction des différentes cibles de deutérium ou de tritium [Ha06] [Gr05].

¹(tab.3.2) La section efficace différentielle de la réaction $^{16}\text{O}(d, n)^{17}\text{F}$ a une section efficace différentielle qui atteint $\frac{d\sigma_{^{16}\text{O}(d, n)^{17}\text{F}}}{d\Omega}(E_d = 3,5\text{MeV}, 0^\circ) \sim 150 \text{ mb/sr}$ à comparer à $\frac{d\sigma_{D(d, np)D}}{d\Omega}(E_d = 3,5\text{MeV}, 0^\circ) \sim 60 \text{ mb/sr}$.

3.1.2 Les cibles d' ^{243}Am

Deux cibles d' ^{243}Am ont été utilisées. Elles ont été fabriquées par électrodéposition au Laboratoire Lawrence Berkeley aux USA [Al05]. Chaque cible est déposée sur un disque en aluminium d'un diamètre de 15 mm et d'une épaisseur de 0,6 mm. Le dépôt d'américium a un diamètre de 6 mm. La quantité de matière, pour chaque cible, a été déterminée par spectrométrie α . Les spectres mesurés sont présentés sur la figure (fig.3.3). L' ^{243}Am se désintègre dans 99% des cas à partir de deux transitions α ($E_\alpha = 5,234 \text{ MeV}$ et $E_\alpha = 5,276 \text{ MeV}$ [Br96]²). Malheureusement la nature du dépôt (Am_2Cl_3 et AmO_2 [Al05] [Li98]) et son épaisseur ne permettent pas d'isoler ces deux raies. Elles correspondent au pic large et le plus intense observé dans les spectres mesurés.

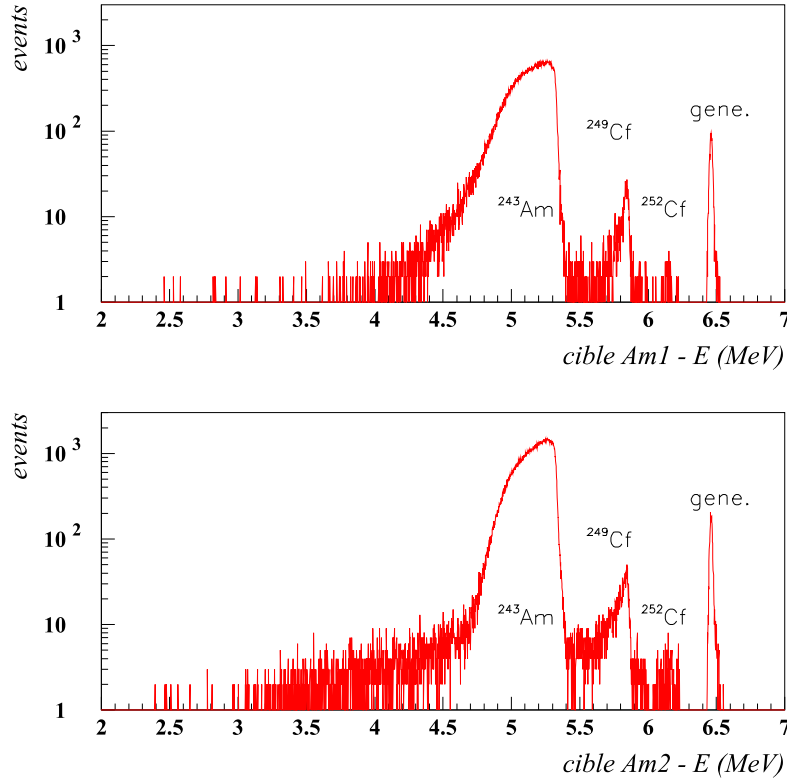


FIG. 3.3 – Spectrométries α des cibles d' ^{243}Am : de gauche à droite, les particules α de $l^{243}\text{Am}$, du ^{249}Cf et du ^{252}Cf . Le dernier pic provient d'un générateur d'impulsion pour mesurer le temps mort.

²les raies α des actinides sont connues au dixième de keV près.

A plus haute énergie, on observe deux pics correspondant au ^{249}Cf ($\langle E_\alpha \rangle = 5,834 \text{ MeV}$; $T_{1/2} = 350,6 \text{ ans}$) et au ^{252}Cf ($\langle E_\alpha \rangle = 5,930 \text{ MeV}$; $T_{1/2} = 2,645 \text{ ans}$). La présence du ^{252}Cf provient d'une légère contamination de notre dispositif. En revanche le ^{249}Cf est une impureté du dépôt actif, son activité correspond à 10 kBq. Compte tenu des durées de vie de chacun des noyaux, le ^{249}Cf n'est présent qu'en très faible quantité. Le ^{243}Am est donc pur à hauteur de 99,96%. Le tableau (tab.3.3) regroupe les caractéristiques des cibles utiles à la mesure.

	$A_0(^{243}\text{Am})^1$ kBq	$A_0(^{249}\text{Cf})^1$ kBq	quantité de matière (μg)	N_{Am} (atomes)	pureté en ^{243}Am (%)
cible ^{243}Am n°1	1139,4 ($\pm 0,4\%$)	9,9 ($\pm 3,1\%$)	155,33 ($\pm 0,4\%$)	$3,823 \cdot 10^{17}$ ($\pm 0,4\%$)	99,96 ($\pm 0,01\%$)
cible ^{243}Am n°2	1177,6 ($\pm 0,4\%$)	14,7 ($\pm 1,9\%$)	160,36 ($\pm 0,4\%$)	$3,951 \cdot 10^{17}$ ($\pm 0,4\%$)	99,94 ($\pm 0,01\%$)

TAB. 3.3 – Caractéristiques des cibles d' ^{243}Am

3.1.3 Le dispositif expérimental

Le dispositif est constitué d'une enceinte à vide, cylindrique, en aluminium, avec le minimum de matière possible pour limiter les réactions parasites (dus aux flux de neutrons). Ainsi, la fenêtre d'entrée de la chambre présente une épaisseur de 0,3 mm. La face avant d'entrée de cette enceinte est placée à 20 mm de la source de neutrons. Dans cette enceinte se trouvent deux ensembles associés respectivement aux cibles d' ^{243}Am et leurs détecteurs de fragments de fission et au détecteur de neutrons constitué d'un film hydrogéné (polypropylène - PP) et d'un détecteur de protons de recul (fig.3.4). Une mesure de la charge déposée par le faisceaux sur la cible de deutérium ou de tritium est enregistrée pour chaque mesure ainsi que le nombre de neutrons détectés par un moniteur ^3He placé à 0° (à une distance de 2,52 m derrière la cible de production de neutrons). Ces informations permettront de normaliser les mesures entre elles.

¹(tab.3.3) Activités calculées le 16/03/2006

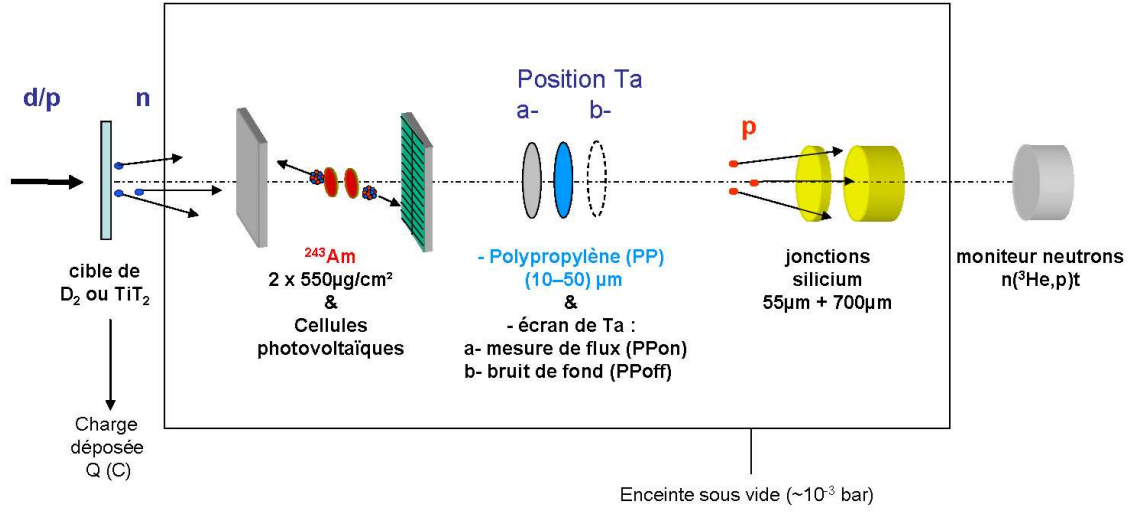


FIG. 3.4 – Schéma du dispositif expérimental.

3.1.3.a Les détecteurs de fragments de fission

Le choix du détecteur de fragments de fission nous a conduit à minimiser la quantité de matière interagissant avec les neutrons et maximiser l'efficacité de détection des fragments de fission. Les deux cibles d' ^{243}Am sont placées dos à dos à environ 40 mm de la source de production de neutrons. Les fragments de fission sont détectés par deux plans de cellules photovoltaïques placés à ~ 6 mm des cibles d' ^{243}Am . Chaque plan représente une efficacité géométrique de détection de $\sim 70\%$ à laquelle correspond un taux de comptage en particules α de 3 MBq alors que le taux de fragments de fission attendu ne dépasse pas 2 événements par seconde (cf. §.2.1.4). Chaque plan de détection est équipé de deux cellules photovoltaïques en raison de leur résistance aux rayonnements ionisants et aux neutrons. Ces cellules ont déjà été décrites dans les travaux précédents du groupe ACEN [Pe02] [Gr05]. Nous rappellerons qu'il s'agit de détecteurs silicium de faible épaisseur ($300\text{ }\mu\text{m}$) dont les propriétés (pour la détection de fragments de fission) sont comparables à celles d'une barrière de surface mais d'un coût plus faible. La face avant ($20 \times 40\text{ mm}^2$) de la cellule est équipée d'une grille métallique de collection de charges créées par les fragments. Cette grille entraîne une perte d'efficacité de 4% que nous avons déterminée à partir d'une source étalon de fragments de fission de ^{252}Cf (l'efficacité intrinsèque d'une cellule est notée $\epsilon_{int} = 96(\pm 1)\%$).

3.1.3.b Détection des neutrons par les protons de recul

Le détecteur de neutrons que nous avons utilisé est identique à celui étudié par C.Grosjean [Gr05]. Il comprend un film hydrogéné en polypropylène d'un diamètre de 15 mm placé à environ 8 cm de la source de neutrons. Ces films hydrogénés ont déjà fait l'objet d'une

analyse chimique et physique très détaillée (rapports stoechiométriques, épaisseurs, uniformités) dont on contrôle les incertitudes. L'épaisseur de ce film est adaptée à l'énergie des neutrons : $10\ \mu\text{m}$ à 1,8 MeV, $20\ \mu\text{m}$ à 3 MeV et $50\ \mu\text{m}$ au-delà de 5 MeV (cf. tab.3.4). Le choix a été fait de détecter les protons de recul émis vers l'avant (les plus énergétiques) dans un cône d'émission de $\pm 6^\circ$ par rapport à la direction des neutrons incidents. Ces protons sont détectés par un télescope à jonction silicium $\Delta E \times E$ placé à 7 cm du film hydrogéné. Le premier élément ΔE a une épaisseur de $55\ \mu\text{m}$ suffisante pour arrêter des protons de 2,4 MeV. Pour des énergies de protons inférieures à 2,4 MeV, seule la première jonction (ΔE) a été utilisée pour détecter les protons de recul. Un soin particulier a été apporté à la mesure de bruit de fond, c'est-à-dire des protons parasites ne provenant pas du film diffuseur. Il est possible de placer, sans ouvrir le dispositif, un disque de tantale en aval du support hydrogéné afin d'arrêter les protons. Ainsi nous disposons d'une mesure de bruit de fond de l'ensemble du dispositif. Pour des raisons de symétrie, durant une mesure "normale" du flux de neutrons, un disque similaire est placé en amont du polypropylène; les réactions envisageables sur le tantale sont toutefois très limitées par des sections efficaces extrêmement faibles [Gr05]. Ces disques ont un diamètre de 20 mm et une épaisseur de 0,1 mm, suffisante pour arrêter des protons d'énergie inférieure à 10 MeV.

3.1.4 Caractéristiques techniques, géométriques et radiologiques

* *Electronique et acquisition des données*

Après préamplification, les signaux des cellules photovoltaïques (4 signaux) et du télescope (2 signaux) sont traités par une électronique au standard NIM. Chaque signal est utilisé pour générer une voie énergie et une voie temps (rapide). Après amplification, les informations "énergie" (4 pour la fission et deux pour les protons) sont dirigées vers un codeur d'amplitude 8 voies - 4096 canaux du système d'acquisition. Après amplification, les signaux rapides sont dirigés vers des discriminateurs à fraction constante. La coïncidence est construite entre les signaux temps des ΔE et E du télescope. Ce signal de coïncidence est dirigé avec les signaux "fission" vers un circuit logique (de type "OU") pour former les signaux de déclenchement de l'acquisition.

En parallèle, on mesure pendant la durée d'une acquisition la quantité de charges accumulées (Q) sur la cible de deutérium ou de tritium ainsi que le nombre de neutrons produits. Cette mesure est un simple monitoring; elle permet de surveiller l'évolution des cibles de production de neutrons à une énergie donnée et de normaliser les différentes mesures.

* *Caractéristiques du dispositif*

Dans ce tableau (tab.3.4), nous allons préciser les cotes (fig.3.5) et grandeurs d'intérêt de notre méthode. Les erreurs de chaque terme de la section efficace de fission (eq.2.19) ont été caractérisées afin de décrire par la suite les erreurs associées à nos mesures.

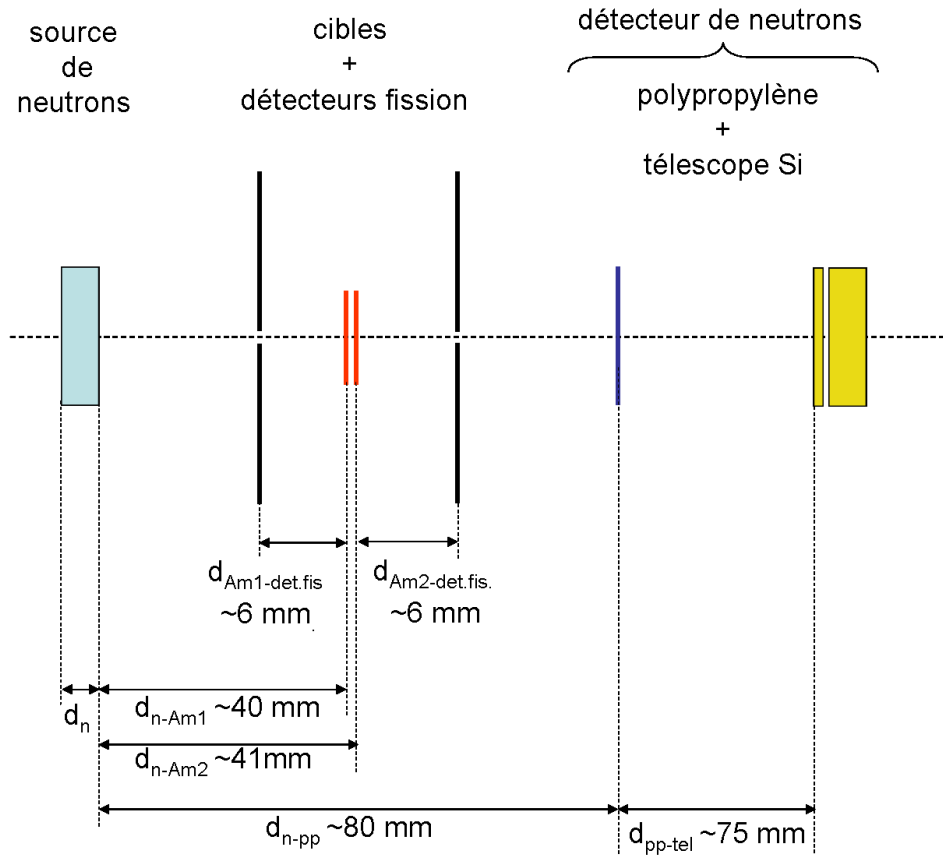


FIG. 3.5 – Schéma coté du dispositif expérimental.

¹(tab.3.4) L'erreur sur la profondeur de la chambre est intégrée dans l'erreur des paramètres d_{n-am1} , d_{n-am2} , d_{n-pp}

²(tab.3.4) l'erreur sur l'efficacité géométrique du détecteur de fragments de fission prend en compte l'incertitude sur les cotes (1,1%) et l'interstice entre les deux cellules formant le détecteur fission (0,7%)

³(tab.3.4) Pour les mesures réalisées à Geel, les cellules de la deuxième cible sont disjointes. Cette perte d'efficacité génère une incertitude supplémentaire estimée à 1,7%

⁴(tab.3.4) Epaisseurs de cibles en $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ calculées pour des cibles de 6,00 mm de diamètre. L'analyse des erreurs (cf § 3.2.3) montre que la section efficace de fission (eq.2.19) ne dépend pas au premier ordre de la surface de la cible.

réaction	$T(p,n)^3He$			$D(d,n)^3He$	
accélérateur	VdG-IRMM-Geel				AIFIRA-CENBG
$E_n(\text{MeV})$ / paramètres	{1,84 ; 2,36}	{2,88}	{3,39}	{5,12 ; 5,72 ; 6,82 ; 7,35 ; 7,87}	{3,63 ; 4,10 ; 4,80 ; 6,00 ; 6,21}
cotes du dispositif (n,p)					
d_{n-am1}	30,4 ($\pm 0,5$) mm			38,6 ($\pm 0,5$) mm	43,3 ($\pm 0,5$) mm
d_{n-am2}	32,2 ($\pm 0,5$) mm			40,4 ($\pm 0,5$) mm	45,2 ($\pm 0,5$) mm
d_{n-pp}	71,6 ($\pm 0,5$) mm			80,00 ($\pm 0,5$) mm	84,6 ($\pm 0,5$) mm
d_{pp-tel}	74,4 ($\pm 0,2$)mm				
$d_{Am1-det.fis.}$	5,83 ($\pm 0,17$) mm				
$d_{Am2-det.fis.}$	6,04 ($\pm 0,18$) mm				
$S_{det.fis.}$	(34,96 ($\pm 0,02$)) ² mm ²				
ϕ_{pp}	15,00 ($\pm 0,02$) mm				
ϕ_{tel}	14,96 ($\pm 0,02$) mm				
$\phi_{Am1/Am2}$	~ 6 mm				
angles solides et efficacités					
Ω_{n-Am1}	0,0301 sr (3,0%)			0,00924 sr (2,0%)	0,00890 sr (2,5%)
Ω_{n-Am2}	0,0268 sr (3,0%)			0,00863 sr (2,0%)	0,00832 sr (2,5%)
Ω_{n-pp}	0,03406 sr (1,3%)			0,01828 sr (1,3%)	0,01822 sr (1,4%)
Ω_{pp-tel}	0,03156 sr (0,85%)				
$\epsilon_{(Am1-det.fis.)_{geo.}}$	69,2 ($\pm 1,3$)% ²				
$\epsilon_{(Am2-det.fis.)_{geo.}}$	70,2 ($\pm 2,0$)% ³				70,2 ($\pm 2,0$)%
$\epsilon_{int}(cell.photov.)$	96 (± 1)%				
caractéristiques des sources de neutrons					
épaisseur de tri- tium / deutérium	0,15 mg/cm ²			0,33 mg/cm ²	0,24 mg/cm ²
Epaisseur fenêtre Mo	-			5 μm	2,7 μm et 4.6 μm
Profondeur de la chambre de deuté- rium (d_n) ¹	-			40 mm	29 mm
$P_{deutrium}$	-			1,2 bar	
caractéristiques des cibles et détecteurs					
Epaisseur ⁴ cible d' ²⁴³ Am n°1	546 (± 2) $\mu g/cm^2$				
Epaisseur ⁴ cible d' ²⁴³ Am n°2	564 (± 2) $\mu g/cm^2$				
Epaisseur du po- lypropylène (PP) (μm)	10,2 ($\pm 0,13$)	10,2 20,4	20,4 ($\pm 0,26$)	51,0 ($\pm 0,66$)	
Jonction ΔE	"Orsay" Si 55 μm				
Jonction E	Canberra Si 700 μm				

TAB. 3.4 – Paramètres de la mesure de section efficace de fission de $l^{243}\text{Am}$ avec leur erreur associée.

3.2 Analyse des données

3.2.1 Les fragments de fission

La figure (fig.3.6) présente les spectres de fragments de fission pour les cibles d' ^{243}Am . L'épaisseur des cibles et les efficacités de détection ($\sim 70\%$) éliminent tout effet de structure de ces spectres (on ne distingue plus la distribution associée à la fission asymétrique de ^{243}Am). Néanmoins, la résolution reste suffisante pour maintenir une bonne séparation entre les fragments et les particules α de radioactivité. Les taux de comptage extraits de ces spectres doivent ensuite être corrigés de deux effets : l'entraînement cinématique et la distribution angulaire des fragments de fission.

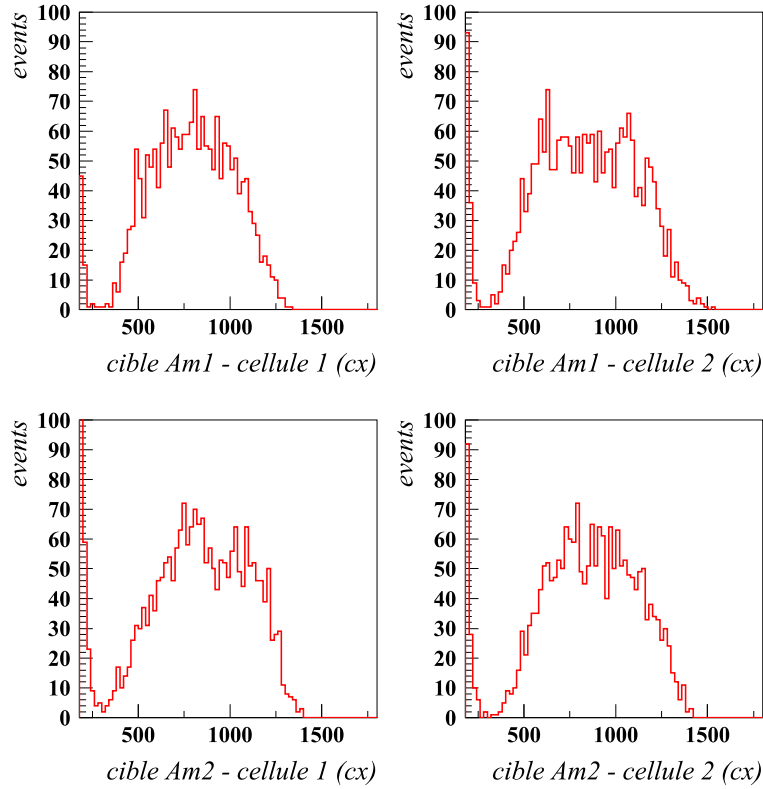


FIG. 3.6 – Spectres de fragments de fission mesurés par les quatre cellules photovoltaïques.

Aux énergies de neutrons où nous avons travaillé, l'effet d'entraînement du noyau fissionnant (centre de masse) ne peut être totalement ignoré. Formellement le passage du centre de masse (cm) au système du laboratoire (lab) s'effectue à partir de l'expression suivante :

$$\frac{\frac{d\sigma}{d\Omega}}{\frac{d\sigma}{d\Omega}}_{lab} = \frac{1 + K + 2 K \cos(\theta^{cm})}{1 + K \cos(\theta^{cm})} \quad (3.1)$$

où

- $\frac{d\sigma}{d\Omega}$ est la section efficace différentielle ;
- K représente le rapport de la vitesse de recul du noyau fissionnant et de la vitesse d'un fragment de fission ;
- θ^{cm} est l'angle d'émission de ce fragment dans le centre de masse.

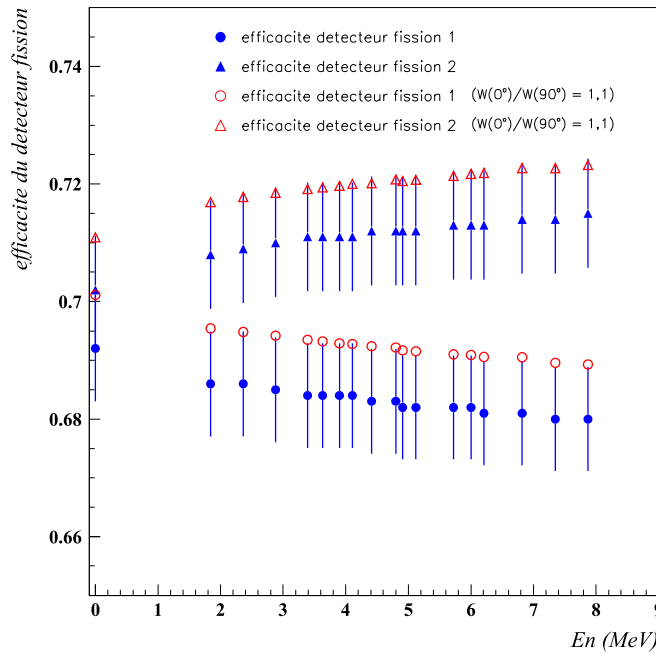


FIG. 3.7 – Efficacité des détecteurs de fragments de fission : les points bleus présentent l'efficacité cinématique des détecteurs pour une émission isotrope des fragments de fission ; les points rouges correspondent à une émission anisotrope des fragments de fission ($W(0^\circ)/W(90^\circ)=1,1$). Les barres d'erreurs présentées reflètent les incertitudes géométriques sur les détecteurs de fragments de fission.

La figure (fig.3.7) illustre cet effet d'entraînement en considérant deux fragments de masses les plus probables (101/139) et une énergie cinétique totale de ces fragments extraite de la

systématique de V.E.Viola [Vi85] ($\langle E_K \rangle = (0.1189 \pm 0.0011) Z^2/A^{1/3} + 7,3(\pm 1.5) \text{ MeV}$). On a d'abord supposé que les fragments de fission étaient émis de façon isotrope dans le centre de masse. Une simulation est alors effectuée à partir de cette hypothèse. Pour les détecteurs de fission placés en aval de la cible ($\text{Am n}^\circ 2$) par rapport au flux de neutrons, cet effet cinématique se traduit par un surcroît d'efficacité de 1,5% (à $E_n = 8 \text{ MeV}$). En revanche, pour les détecteurs de fission situés en amont de la cible ($\text{Am n}^\circ 1$), l'effet cinématique se traduit par une perte d'efficacité d'environ 1% (à $E_n = 8 \text{ MeV}$). L'effet de la distribution angulaire des fragments de fission est plus difficile à évaluer puisqu'il existe peu de mesures de distribution angulaire pour ^{243}Am . Nous avons identifié trois mesures en neutrons rapides, les deux premières à $E_n=2,0 \text{ MeV}$ et $E_n=2,5 \text{ MeV}$ [Fu85] et une troisième [Fo67-3] à $E_n=14,5 \text{ MeV}$, mais aucune entre $E_n=3 \text{ MeV}$ et $E_n=8 \text{ MeV}$. Les mesures montrent que les distributions angulaires sont légèrement anisotropes avec un rapport d'émission des fragments de fission à $0^\circ/90^\circ$, noté $W(0^\circ)/W(90^\circ)$, de l'ordre de $W(0^\circ)/W(90^\circ) = 1,1$ avec une incertitude de 10%. Comme le montre la figure (fig.3.7), cet effet d'anisotropie reste dans l'incertitude géométrique des détecteurs. Dans la suite de ce travail, nous allons supposer que les fragments sont émis de façon isotrope dans le centre de masse.

3.2.2 Le flux de neutrons

Le flux de neutrons arrivant sur la cible de ^{243}Am est détecté à partir du télescope à protons de recul. Nous allons présenter cette partie de la mesure et la méthodologie adoptée. Nous terminerons par les résultats qui nous ont permis de déterminer les paramètres propres au flux de neutrons.

3.2.2.a Les protons de recul

Les protons de recul sont détectés par un télescope $\Delta E \times E$. Ce montage nous a permis d'identifier les protons de recul et les particules (p, n, α) associées aux réactions parasites observées lors des mesures. La figure (fig.3.8) présente sous forme de diagramme la réponse du télescope lors d'une de nos mesures. Deux types d'événements apparaissent :

- les protons de recul pour lesquels le dispositif fonctionne en montage $\Delta E - E$. On distingue très nettement la trace des protons de recul dont l'énergie résiduelle se situe autour de 7 MeV dans l'exemple choisi.
- Les réactions parasites sur les constituants du télescope (Al & Si) soumis au flux de neutrons. Rappelons que celui-ci se comporte comme un détecteur 4π pour toutes ces réactions parasites. La réaction la plus contraignante est la réaction $^{29}\text{Si}(n,p)^{29}\text{Al}$, dont la chaleur de réaction est quasiment nulle ($Q = -0,035 \text{ MeV}$). Les protons générés par cette réaction ont des énergies voisines de celles des protons diffusés. Sa contribution représente environ 5% du nombre total de protons détectés.

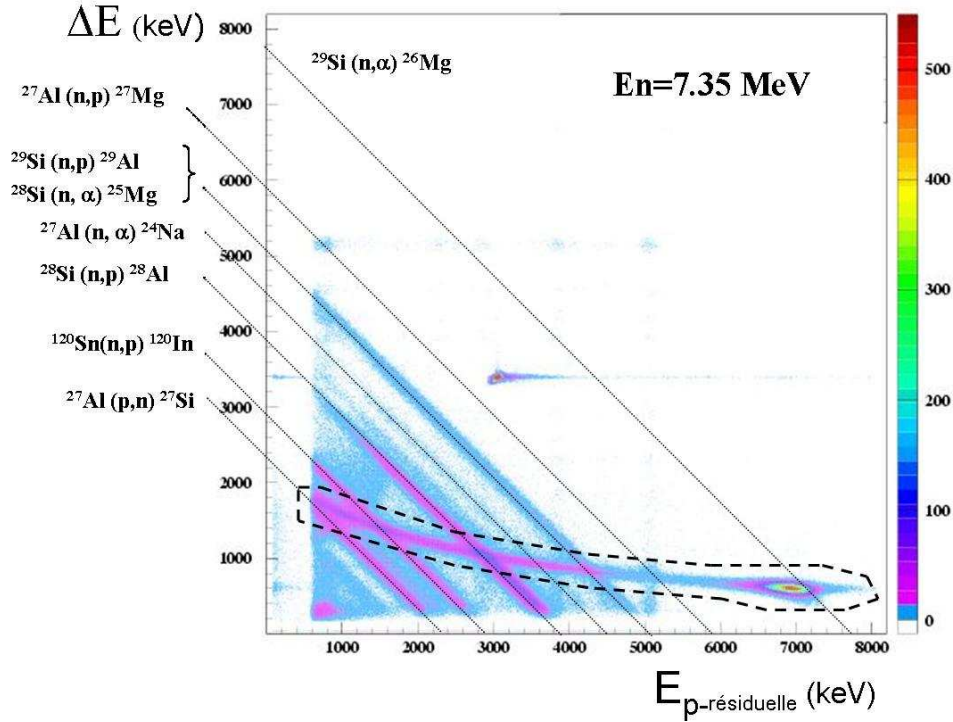


FIG. 3.8 – Diagramme bidimensionnel donné par le télescope : perte d'énergie (ΔE) en fonction de l'énergie résiduelle (E_{res}) pour des neutrons de $E_n = 7,9 \text{ MeV}$. L'hyperbole correspond à la trace des protons dans le télescope ; les droites correspondent aux réactions parasites dans le télescope.

Pour chaque point de mesure, la contribution du bruit de fond est mesurée en masquant régulièrement le film de polypropylène (mesures PPoff) après une mesure directe des protons de recul (mesure PPon). Toutes ces mesures sont normalisées par rapport au nombre relatif de neutrons fourni par le moniteur. Après calibration en énergie des deux détecteurs du télescope, l'énergie des protons est reconstruite. La figure (fig.3.9.a) montre les spectres de protons mesurés directement (PPon) ou provenant du bruit de fond (PPoff). La figure (fig.3.9.b) montre le spectre des protons de recul obtenu après soustraction des spectres précédents. Le spectre obtenu présente une allure gaussienne avec une légère asymétrie à basse énergie. La contribution de ces protons (queue de la distribution) représente 3 à 5% des protons de recul enregistrés.

L'intégration de ce spectre doit nous fournir le flux de neutrons recherché. Nous avons besoin pour cela de déterminer l'efficacité du télescope, la distribution en énergie de neutrons incidents au polypropylène dont on va déduire la section efficace moyenne de diffusion (n,p) notée $\overline{\sigma_{(n,p)}}$. Comme nous l'avons signalé, ces quantités ont été déterminées à partir d'un code de simulation dont nous présenterons les résultats dans le paragraphe suivant.

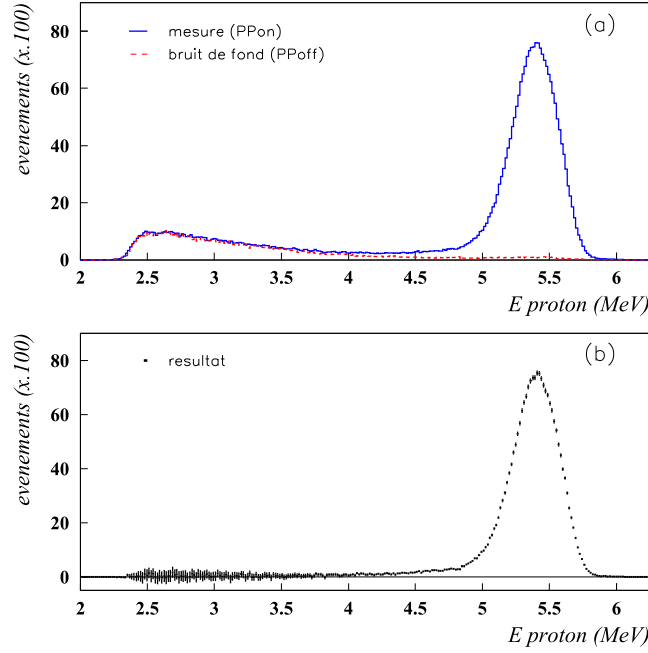


FIG. 3.9 – $E_d=3\text{MeV}$; $E_n=5,72\text{ MeV}$ - (a) Spectres de protons diffusés direct (PPon) et de bruit de fond (PPoff). (b) Spectre de protons diffusés par des neutrons quasi-mono-énergétiques après soustraction du bruit de fond.

3.2.2.b Simulation

* Spectres simulés des protons de recul

La simulation que nous allons décrire suit la trajectoire d'un neutron depuis sa création jusqu'à sa détection via un proton de recul par le télescope. Le calcul prend en compte la distribution angulaire des neutrons, la géométrie de la source de neutrons (solide ou gazeuse), la distribution angulaire des protons diffusés par les neutrons et la géométrie du télescope à protons de recul. Comme nous l'avons déjà précisé, les matériaux utilisés dans le dispositif ont été choisis les plus transparents possibles aux neutrons. Typiquement, la source de neutrons présente une longueur de 3 à 4 cm (D_2 gazeux) et quelques microns pour la cible solide (TiT). Les matériaux constituant l'enceinte (Al) et les collimateurs (Ta) présentent une épaisseur inférieure à 2 mm. Dans tous les cas, ces quantités sont nettement plus faibles que les libres parcours moyens des neutrons ou des particules chargées utilisées dans nos mesures. Ceci est illustré par le tableau (tab. 3.5).

Réaction	σ_r	λ	épaisseur de matière
$^{48}Ti(p, el)$	$< 1,2 b$	$> 26 cm$	$\sim 8 \mu m$
$^{47-48}Ti(n, tot)$	$< 4,5 b$	$> 7 cm$	$\sim 8 \mu m$
$D(d, el)$	$\sim 1 b$	$\sim 34 m$	3 à 4 cm
$D(n, tot)$	$1,6 b < \sigma < 3,1 b$	$100m < \lambda < 210 m$	3 à 4 cm
$^{27}Al(n, tot)$	$< 10 b$	$> 1,6 cm$	$\sim 0,2 cm$
$^{63}Cu(n, tot)$	$< 10 b$	$> 1,2 cm$	$\sim 0,05 cm$
$^{181}Ta(n, tot)$	$< 10 b$	$> 0,5 cm$	$\sim 0,01 cm$
$(CH_2)_n(n, tot)$	$< 10 b$	$> 25 m$	10-50 μm

TAB. 3.5 – Tableau des libres parcours moyens λ des neutrons d'énergie $0,5 MeV < E_n < 20 MeV$ par rapport aux épaisseurs des matériaux présents dans l'enceinte à vide et la source de neutrons.

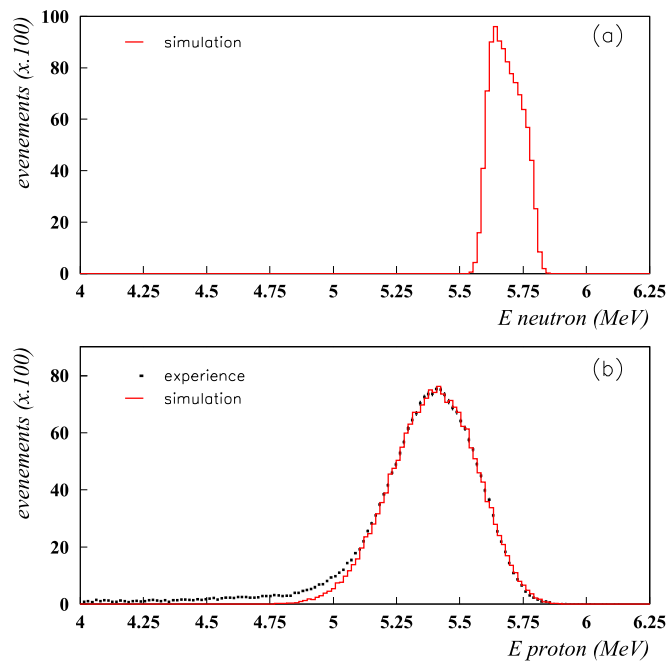


FIG. 3.10 – $E_d = 3MeV$; $E_n = 5.72MeV$ -a) Flux de neutrons donné par la simulation. -b) Spectres de protons expérimental et simulé

La figure (fig.3.10.a) présente le spectre simulé de neutrons au niveau du polypropylène pour lesquels les protons de recul sont détectés par le télescope. Il correspond à une de nos mesures effectuées à partir de la réaction $D(d, n)^3He$ pour des deutons incidents d'une énergie de 3 MeV. La simulation tient compte de la perte d'énergie des deutons dans la fenêtre d'entrée

et dans le gaz de la cible. On a supposé une répartition uniforme des points d'émission des neutrons dans l'axe du faisceau traversant la chambre. Cette hypothèse se justifie par le fait que le libre parcours moyen d'un deuton de 3 MeV est largement supérieur aux dimensions de la cible gazeuse (tab.3.5). Ce spectre est utilisé pour définir l'énergie moyenne des neutrons incidents arrivant sur les cibles d' ^{243}Am et le film de polypropylène. Il définit l'énergie moyenne effective des neutrons et sa dispersion. Cette distribution nous a également permis de calculer la section efficace moyenne de la diffusion élastique (n,p) nécessaire au calcul du flux moyen de neutrons arrivant sur le film de polypropylène.

La figure (fig.3.10.b) présente le spectre des protons de recul détectés par le télescope pour des neutrons d'énergie $E_n = 5,72$ MeV. L'épaisseur du film de polypropylène et la résolution en énergie du télescope sont pris en compte par la simulation. On remarquera que le spectre obtenu est en bon accord avec le spectre mesuré. Néanmoins, la simulation ne peut répondre à l'asymétrie de la distribution mesurée à cette énergie. Cet effet d'asymétrie provient nécessairement d'effets physiques dont on ne tient pas compte dans notre simulation. Nous avons tenté d'identifier les sources possibles de ces protons de basse énergie.

– *Soustraction du bruit de fond*

Les mesures de bruit de fond (PPoff) ont été réalisées avec des fluences comparables aux mesures de protons diffusés, de sorte que le facteur de normalisation déduit du monitoring neutrons soit proche de l'unité. La queue de la distribution en énergie est donc entachée d'une faible incertitude statistique même si ces événements ne représentent qu'une faible proportion du spectre de protons diffusés (<3%).

– *Emission parasite de neutrons*

On peut l'exclure car la cible gazeuse (sans gaz) permet de mesurer la contribution des neutrons ne provenant pas de la réaction $D(d,n)^3\text{He}$. Nos mesures (fig.3.11) indiquent que la contribution de ces neutrons parasites est négligeable ($\sim 0,6\%$)

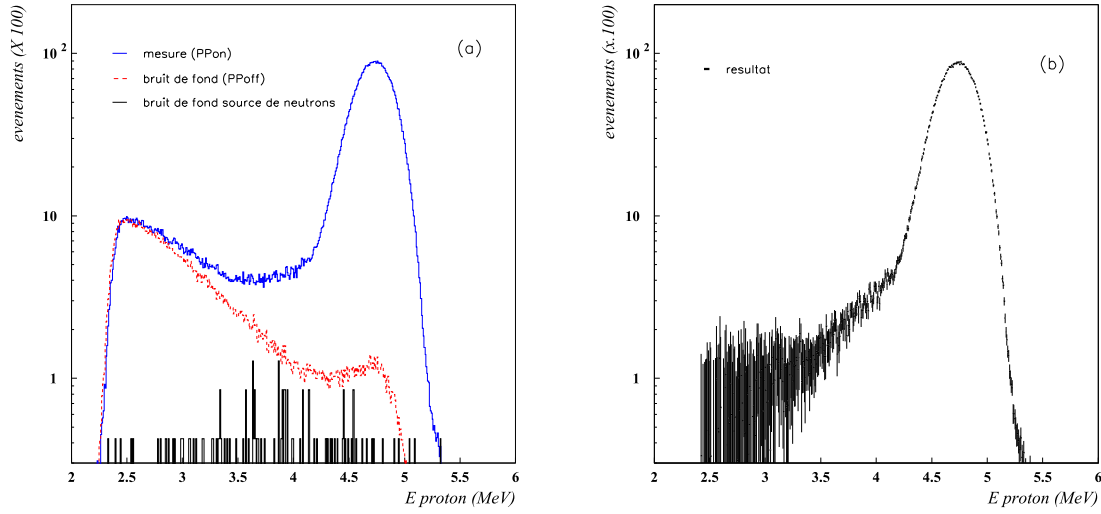


FIG. 3.11 – $E_d=2,5\text{MeV}$; $E_n=5,12\text{ MeV}$ - a) Spectres de protons diffusés : mesure directe (PPon), mesure de bruit de fond du télescope (PPoff), mesure de bruit de fond de la source de neutrons (cible gazeuse sans deutérium). Le bruit de fond neutrons représente $\sim 0,6\%$ de la mesure directe (PPon).

b) Spectre de protons diffusés après soustraction du bruit de fond.

– Dispersions angulaire et en énergie des protons de recul

Ces effets ne sont pas pris en compte dans notre simulation. On sait que ces effets sont encore assez mal maîtrisés et tout particulièrement dans le domaine d'énergie qui nous concerne ($[1 ; 10]\text{ MeV}$). Pour traiter ce problème spécifique, nous avons utilisé le code MCNPX où les effets de dispersion sont implémentés. Pour des raisons de temps de calcul, nous avons considéré un faisceau de neutrons arrivant perpendiculairement à la face d'entrée du diffuseur (polypropylène). Les protons diffusés sont émis d'une manière isotrope dans le centre de masse de la diffusion. Le libre parcours moyen des neutrons est très grand ($> 25\text{ m}$) devant l'épaisseur du diffuseur ($50\text{ }\mu\text{m}$). On a considéré une distribution uniforme des centres de diffusion à l'intérieur du polypropylène. L'interface MURE [MURE] a été utilisée pour construire le fichier d'entrée qui définit la géométrie du dispositif simulé. Comme le montre la figure (fig.3.12), le spectre de protons simulés par MCNPX [MCNPX] est en bon accord avec notre simulation. Il ne prédit pas une queue de distribution à basse énergie. Ce résultat valide notre analyse sans toutefois répondre au problème de l'asymétrie de la distribution.

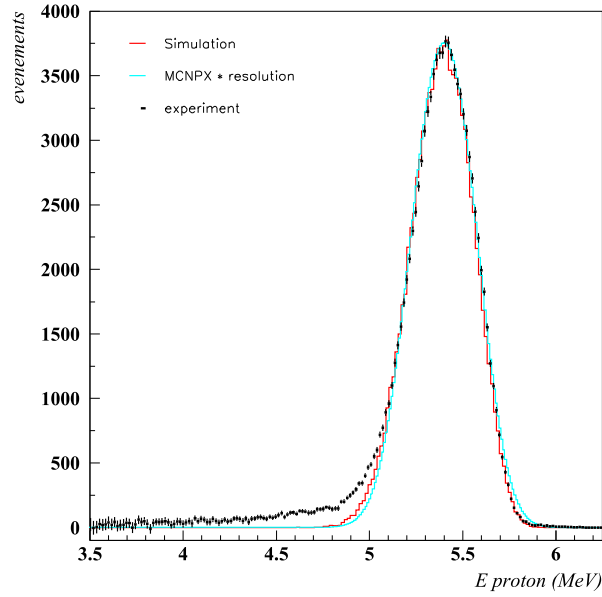


FIG. 3.12 – $E_d=3$ MeV ; $E_n =5.72$ MeV - Comparaison entre l'expérience, notre simulation et la simulation MCNPX.

– Effets dus à l'environnement de la mesure

Le même code MCNPX a été utilisé pour simuler le dispositif (source de neutrons et enceinte à vide) ainsi que son environnement (murs, sol, support mécanique de l'enceinte...). L'observable considérée ici concerne la distribution en énergie des neutrons traversant le film de polypropylène. Dans un premier temps nous avons considéré tous les neutrons arrivant avec une incidence quelconque : chacun de ces neutrons peut subir une diffusion élastique accompagnée d'un proton de recul. La figure (fig.3.13.a) présente la distribution du taux de diffusion en fonction de l'énergie des neutrons arrivant sur le film pour 10^9 neutrons sources de 5,72 MeV. On reconnaît autour de l'énergie initiale le taux de réaction associé aux neutrons directs. La proportion de ces événements représente $\sim 98\%$ des événements simulés. Ce pic est accompagné à basse énergie d'une queue de distribution associée aux neutrons diffusés par l'environnement et notre dispositif. A ce fond continu, se superposent les pics de diffusion élastique des neutrons sur les éléments légers. Le plus intense correspond au support d'aluminium des cibles d' ^{243}Am et à l'enceinte de la chambre à vide. Cependant, tous ces événements ne vont pas générer des protons détectables par le télescope. Rappelons que notre géométrie favorise les neutrons émis aux petits angles autour de l'axe du faisceau de neutrons. C'est-à-dire que

seront favorisés les événements associés aux neutrons en incidence quasi-normale au film de polypropylène. La simulation a été refaite en sélectionnant les neutrons arrivant avec un angle inférieur à $\pm 8^\circ$ par rapport à cette normale. Le résultat est présenté figure (fig.3.13.b). On retrouve une structure similaire avec néanmoins une réduction importante ($\sim 1/25$) de la contribution de neutrons diffusés. Là encore, les neutrons diffusés ne permettent pas d'expliquer l'asymétrie du spectre des protons diffusés.

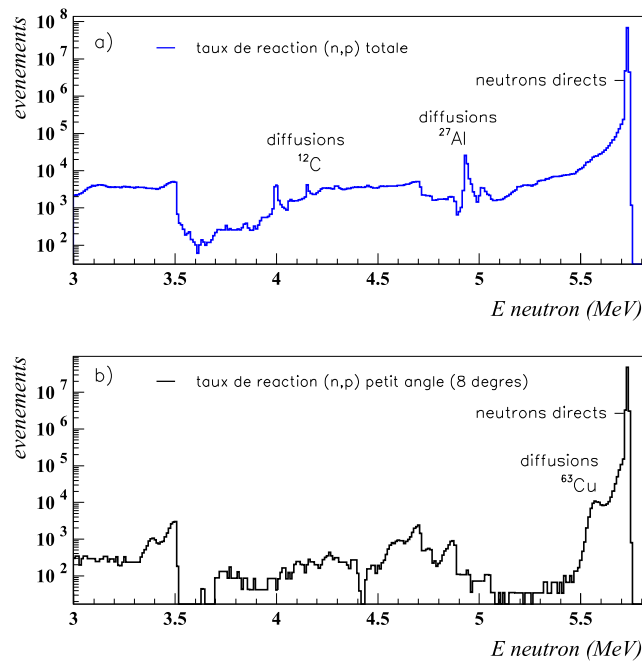


FIG. 3.13 – a) - Simulation MCNPX du spectre de neutrons incidents au film de polypropylène. La courbe bleu indique le taux de réaction quel que soit l'angle d'incidence. b) - La courbe en noir sélectionne uniquement les réactions pour des neutrons arrivant sur le film de polypropylène avec un angle inférieur à 8° .

– Effets de résolution des jonctions silicium

Un dernier effet envisageable porte sur un défaut de collection de charges dans les jonctions siliciums. Dans ce cas, les protons sont émis par le polypropylène à l'énergie définie par la cinématique mais apparaissent dans le spectre à plus basse énergie. Le spectre obtenu est alors la réponse du détecteur à protons de recul (polypropylène + télescope) à un flux quasi-monoénergétique de neutrons. Il est à noter que les jonctions ont été collimatées pour limiter les effets de bords. De plus, les spectres

de calibration obtenus avec une source de particules α ne présentent pas cet effet ; toutefois le parcours d'une particule α dans le silicium est beaucoup plus faible que celui d'un proton.

En résumé, nous n'avons pas trouvé d'explication raisonnable à cette asymétrie. Néanmoins, MCNPX confirme notre propre code de simulation en ce qui concerne les distributions en énergie des neutrons incidents et des protons de recul qui leur sont associés.

* *Efficacité de détection des protons*

La dernière quantité nécessaire au calcul du flux de neutrons concerne l'efficacité de détection du télescope. Celle-ci est fournie par la simulation. Elle est définie par la relation (eq.3.2) que nous rappelons ci-dessous :

$$\epsilon_p^{sim} = \frac{N_p^{sim-det}}{N_p^{sim}} \quad (3.2)$$

où

- ϵ_p^{sim} : efficacité du détecteur de protons déduite de la simulation.
- N_p : nombre de protons émis (sim) et détectés (sim-det) dans la simulation.

Dans ce calcul, on tient compte :

- de la géométrie des sources de neutrons ($T(p,n)^3\text{He}$ ou $D(d,n)^3\text{He}$) et des distributions angulaires des deux réactions utilisées dans ce travail ;
- de la géométrie du télescope et de la distribution angulaire de la diffusion élastique (n,p).

La figure (fig.3.14) présente les efficacités de notre montage pour les différentes sources de neutrons. Pour les deux réactions, les efficacités augmentent avec l'énergie des neutrons. Les efficacités du télescope avec la réaction $D(d,n)^3\text{He}$ sont légèrement supérieures à celles de la réaction $T(p,n)^3\text{He}$. Cet effet est dû à la géométrie de la cible gazeuse dont le point d'émission des neutrons est plus éloigné du polypropylène que celui de la cible de tritium. C'est un effet purement géométrique lié à la divergence du faisceau de neutrons sur le polypropylène et à la variation de l'anisotropie de la diffusion (n,p) en fonction de l'énergie des neutrons. Cette réduction varie de 1 à 4 % dans le domaine des neutrons que nous avons utilisé.

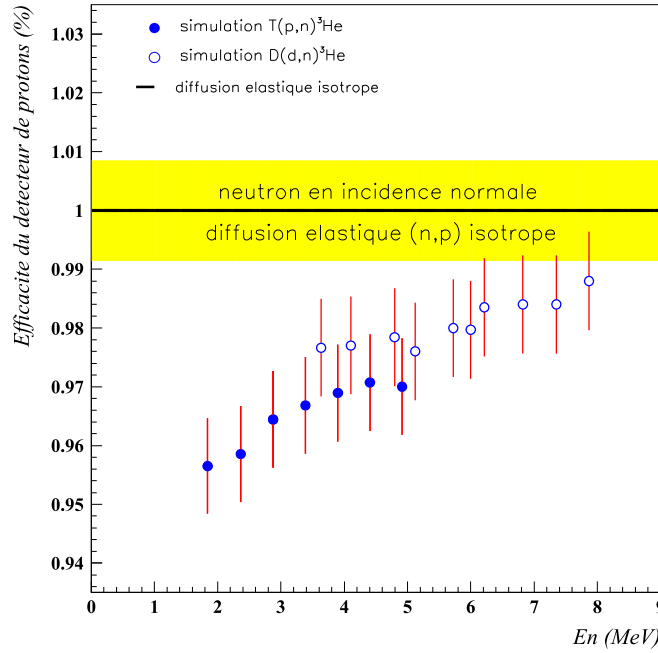


FIG. 3.14 – Efficacités de détection des protons de recul en fonction de l'énergie des neutrons - comparaison avec le cas isotrope (efficacité de $1,00(\pm 0,09)\%$ quelle que soit l'énergie des neutrons).

3.2.3 Détermination de la section efficace de fission

Nous venons de déterminer le flux de neutrons arrivant sur le polypropylène. Il nous faut maintenant ramener ce flux au niveau de la cible d' ^{243}Am pour déterminer la section efficace de fission (cf.§2.1.4) définie par l'équation suivante :

$$\sigma_{(n,f)}(En) = \left(\frac{N_f}{N_p} \right) \cdot \left(\frac{\Omega_{n-pp} \cdot N_H \cdot \epsilon_p^{sim}}{\Omega_{n-Am} \cdot N_{Am} \cdot \epsilon_f \cdot \epsilon_{int}} \right) \cdot \overline{\sigma_{(n,p)}} \quad (3.3)$$

où

- N_f et N_p sont les taux de comptage en fragments de fission et en protons ;
- Ω_{n-Am} et Ω_{n-pp} sont les angles solides de la cible d'américium et du film de polypropylène ;
- ϵ_f et ϵ_{int} sont les efficacités cinématiques et intrinsèques du détecteur de fragments de fission ;
- N_H et N_{Am} sont les quantités de matière (*atomes/cm²*) de la cible d'américium et du film de polypropylène ;

- ϵ_p^{sim} et $\overline{\sigma_{(n,p)}}$ sont l'efficacité de détection des protons par le télescope et la section efficace de diffusion (n,p) moyenne fournie par la simulation ;

On vient de déterminer les taux de comptage et les efficacités de détection des particules chargées, il reste à définir le rapport des angles solides sous-tendus respectivement par le film de polypropylène et la cible d' ^{243}Am et noté $\frac{\Omega_{n-pp}}{\Omega_{n-Am}}$. Ce rapport a été déterminé à partir d'un calcul de simulation qui prend en compte les géométries des sources de neutrons et de la cible d' ^{243}Am . Les quantités de matière entrant dans le calcul de la section efficace de fission s'expriment par le rapport des nombres d'atomes d' ^{243}Am et d'hydrogène par unité de surface. Au niveau de la cible d' ^{243}Am la surface de la cible intervient à la fois dans ce calcul de l'angle solide (Ω_{n-Am}) et dans le calcul de la quantité de matière N_{Am} . Le calcul de la surface du dépôt d' ^{243}Am est basé sur le diamètre du dépôt fourni par le constructeur (6 mm). L'incertitude de cette surface ne saurait être meilleure que 3%. Si l'on passe à un rayon de 4 mm (soit une augmentation de 77%) la section efficace de fission varie seulement de 0,23%. Notre protocole de mesure n'est donc pas sensible au terme de surface intervenant implicitement dans l'équation de la section efficace de fission (eq.3.3).

3.3 Analyse des erreurs

Dans cette partie, nous allons discuter des erreurs des différents paramètres et de leur importance dans la description des erreurs de mesures de la section efficace de fission. Ces deux notions s'expriment respectivement par les variances et les sensibilités des paramètres à l'erreur de l'observable mesurée. La non-indépendance des paramètres entre eux est prise en compte par les termes covariances entre ces paramètres. L'utilisation d'une même technique pour plusieurs mesures implique l'existence d'erreurs communes aux mesures à différentes énergies de neutrons. Ce lien systématique entre les mesures définit les covariances des observables mesurées. On parle alors de propagation des erreurs au sein d'une série de mesures. Les expériences réalisées sont alors décrites par les mesures, les variances et les covariances entre ces mesures. L'ensemble de ces informations est nécessaire pour comparer et évaluer les données d'une même observable obtenues par deux expériences différentes. Nous commencerons par présenter la formulation générale des variances et covariances de mesures ; puis nous décrirons ces quantités pour notre technique des mesures de sections efficaces de fission.

3.3.1 Formulation générale de la variance d'une observable mesurée

Nous allons maintenant analyser dans le détail les sources d'erreurs. La compréhension complète de l'analyse d'une section efficace passe nécessairement par une description au plus juste des incertitudes de chaque paramètre et des corrélations liant ces paramètres. Dans un premier temps, on se place dans le cas général d'une grandeur F_i fonction de paramètres a_k :

$$F_i = f_i(a_1; \dots a_k; \dots a_p) = f_i(\{a_k\}) \text{ avec } 1 \leq k \leq p \quad (3.4)$$

Dès lors l'erreur quadratique ou variance sur la grandeur F_i peut être calculée à partir de la règle de propagation des erreurs. On peut écrire au premier ordre :

$$dF_i = \sum_{k=1}^p \frac{\partial f_i}{\partial a_k} da_k \quad (3.5)$$

$$(dF_i)^2 = \sum_{k=1}^p \left(\frac{\partial f_i}{\partial a_k} \right)^2 da_k^2 + 2 \sum_{1 \leq k' < k}^p \frac{\partial f_i}{\partial a_k} \cdot \frac{\partial f_i}{\partial a_{k'}} da_k da_{k'} \quad (3.6)$$

L'espérance du carré d'une variation élémentaire correspond à la variance de la grandeur F_i

$$E[(\Delta F_i)^2] = \text{Var}(F_i) = \sigma^2(F_i) \quad (3.7)$$

$$\text{Var}(F_i) = \sum_{k=1}^p \left(\frac{\partial f_i}{\partial a_k} \right)^2 \text{Var}(a_k) + 2 \sum_{1 \leq k' < k}^p \frac{\partial f_i}{\partial a_k} \cdot \frac{\partial f_i}{\partial a_{k'}} \cdot \text{Cov}(a_k; a_{k'}) \quad (3.8)$$

où

- $Var(F_i)$ définit la variance de la grandeur calculée F_i : $Var(F_i) = \sigma^2(F_i)$
- $\sigma(F_i)$ écart type de la quantité F_i
- $Var(a_k) = E[(\Delta a_k)^2]$ définit la variance du paramètre a_k
- $Cov(a_k; a_{k'}) = E(\Delta a_k \cdot \Delta a_{k'})$ définit la covariance des paramètres a_k et $a_{k'}$

On en déduit l'erreur relative :

$$\begin{aligned} \frac{Var(F_i)}{F_i^2} &= \sum_k^p \left(\frac{\partial f_i}{\partial a_k} \cdot \frac{a_k}{f_i} \right)^2 \frac{Var(a_k)}{a_k^2} \\ &+ 2 \sum_{1 \leq k' < k}^p \frac{\partial f_i}{\partial a_k} \cdot \frac{\partial f_i}{\partial a_{k'}} \cdot \frac{(a_k \cdot a_{k'})}{f_i^2} \frac{Cov(a_k; a_{k'})}{a_k \cdot a_{k'}} \end{aligned} \quad (3.9)$$

Ce résultat se réécrit plus simplement :

$$\frac{Var(F_i)}{F_i^2} = \sum_{k=1}^p (S_{ik})^2 \frac{Var(a_k)}{a_k^2} + 2 \sum_{1 \leq k' < k}^p S_{ik} \cdot S_{ik'} \cdot \frac{Cov(a_k; a_{k'})}{a_k \cdot a_{k'}} \quad (3.10)$$

$$\text{avec } S_{ik} = \frac{\partial f_i}{\partial a_k} \cdot \frac{a_k}{f_i} = \frac{\partial f_i}{f_i} / \frac{\partial a_k}{a_k} = a_k \cdot \frac{\partial \ln(f_i)}{\partial a_k} \quad (3.11)$$

La grandeur S_{ik} est alors appelée coefficient de sensibilité de l'observable F_i au paramètre a_k . Ce nombre représente le rapport de la variation relative de l'observable F_i à celle du paramètre a_k ; ce qui peut se réécrire comme la dérivée logarithmique de l'observable F_i affectée d'un poids égal au paramètre varié. Ce nombre sans unité est parfois exprimé en %/% : la sensibilité donne donc la variation de F_i en réponse à la variation du paramètre a_k . On retrouve l'expression de la théorie des perturbations généralisées [Ga86].

Pour des mesures différentielles en énergie comportant n mesures (E_n), les coefficients de sensibilités peuvent s'écrire dans une matrice ($[S_i]$) avec p lignes correspondant aux paramètres $\{a_k\}_{k=1,p}$ et n colonnes correspondant au nombre de points en énergie de la mesure :

$$S_{i,k}(E) = \frac{\partial f_i}{\partial a_k}(E) \cdot \frac{a_k}{f_i(E)} \quad (3.12)$$

soit pour n mesures en énergie de neutrons (E_n) et p paramètres :

$$[S_i](E) = \begin{pmatrix} S_{i,1}(E_1) & S_{i,1}(E_2) & \dots & S_{i,1}(E_n) \\ S_{i,2}(E_1) & S_{i,2}(E_2) & \dots & S_{i,2}(E_n) \\ \dots & \dots & \dots & \dots \\ S_{i,k}(E_1) & S_{i,k}(E_2) & \dots & S_{i,k}(E_n) \\ \dots & \dots & \dots & \dots \\ S_{i,p}(E_1) & S_{i,p}(E_2) & \dots & S_{i,p}(E_n) \end{pmatrix} \quad (3.13)$$

3.3.2 Formulation générale de la covariance de deux observables mesurées

Dans le paragraphe précédent, nous avons décrit l'erreur sur une observable F_i fonction de paramètres a_k . Pour toutes autres observables F_j fonctions des mêmes paramètres a_k , il existe formellement une corrélation entre ces deux observables qu'il nous faut étudier. En utilisant la relation (eq.3.5), il est alors possible d'écrire le produit de deux variations élémentaires :

$$dF_i \, dF_j = \sum_{k=1}^{p_i} \frac{\partial f_i}{\partial a_k} da_k \cdot \sum_{k=1}^{p_j} \frac{\partial f_j}{\partial a_k} da_k \quad (3.14)$$

$$dF_i \, dF_j = \sum_{k=1}^{p'} \frac{\partial f_i}{\partial a_k} \frac{\partial f_j}{\partial a_k} (da_k)^2 + \sum_{1 \leq k' < k}^{p'} \left(\frac{\partial f_i}{\partial a_k} \frac{\partial f_j}{\partial a_{k'}} + \frac{\partial f_i}{\partial a_{k'}} \frac{\partial f_j}{\partial a_k} \right) da_k \, da_{k'} \quad (3.15)$$

où p' est le nombre de paramètres des deux observables F_i et F_j tel que :

$$\{a_k\} = \{a_k^i / i = [1, p_i]\} \cup \{a_k^j / j = [1, p_j]\} \quad (3.16)$$

$$p' = \text{Card}\{a_k\} \quad (3.17)$$

La covariance est égale à l'espérance du produit des variations des observables F_i et F_j :

$$\text{Cov}(F_i; F_j) = E[\Delta F_i \cdot \Delta F_j] \quad (3.18)$$

$$\begin{aligned} \text{Cov}(F_i; F_j) &= \sum_{k=1}^{p'} \frac{\partial f_i}{\partial a_k} \frac{\partial f_j}{\partial a_k} \text{Var}(a_k) \\ &+ \sum_{1 \leq k' < k}^{p'} \left(\frac{\partial f_i}{\partial a_k} \frac{\partial f_j}{\partial a_{k'}} + \frac{\partial f_i}{\partial a_{k'}} \frac{\partial f_j}{\partial a_k} \right) \text{Cov}(a_k; a_{k'}) \end{aligned} \quad (3.19)$$

on peut alors introduire les facteurs de sensibilité de la grandeur F aux paramètres a_k :

$$\begin{aligned} \text{Cov}(F_i; F_j) &= F_i \, F_j \sum_{k=1}^{p'} S_{ik} \, S_{jk} \frac{\text{Var}(a_k)}{(a_k)^2} \\ &+ F_i \, F_j \sum_{1 \leq k' < k}^{p'} \left(S_{ik} \, S_{jk'} + S_{ik'} \, S_{jk} \right) \frac{\text{Cov}(a_k; a_{k'})}{a_k \cdot a_{k'}} \end{aligned} \quad (3.20)$$

Nous obtenons l'expression de la covariance de deux observables, correspondant à un élément de la matrice de variances-covariances. Les variances (eq. 3.10) et covariances (eq. 3.20) peuvent alors se présenter de la manière suivante :

$$\text{Cov}(F) = \begin{pmatrix} \text{Var}(F_1) & \text{Cov}(F_1; F_2) & \dots & \text{Cov}(F_1; F_j) & \dots & \dots & \text{Cov}(F_1; F_n) \\ \text{Cov}(F_2; F_1) & \text{Var}(F_2) & \dots & \text{Cov}(F_2; F_j) & \dots & \dots & \text{Cov}(F_2; F_n) \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \\ \text{Cov}(F_j; F_1) & \text{Cov}(F_j; F_2) & \dots & \text{Var}(F_j) & \dots & \dots & \text{Cov}(F_j; F_n) \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \\ \text{Cov}(F_n; F_1) & \text{Cov}(F_n; F_2) & \dots & \text{Cov}(F_n; F_j) & \dots & \dots & \text{Var}(F_n) \end{pmatrix} \quad (3.21)$$

D'après la relation (eq. 3.20), $Cov(F_i; F_j) = Cov(F_j; F_i)$, la matrice des variances-covariances est donc symétrique.

3.3.3 Erreur de la section efficace de fission

Dans notre cas, l'observable d'intérêt est la section efficace de fission σ_f et les paramètres $\{a_k\}$ sont ceux apparaissant dans la relation (3.3) rappelée ci-dessous :

$$\sigma_{(n,f)}(E_n) = \left(\frac{N_f}{N_p} \right) \cdot \left(\frac{\Omega_{n-pp} \cdot N_H \cdot \epsilon_p^{sim}}{\Omega_{n-Am} \cdot N_{Am} \cdot \epsilon_f \cdot \epsilon_{int}} \right) \cdot \overline{\sigma_{(n,p)}}(E_n)$$

La section efficace de fission étant le rapport de produits de p paramètres, les termes de sensibilité¹ peuvent donc se réécrire plus simplement :

$$\sigma_f = \prod_{l=1}^L a_l / \prod_{m=L+1}^{L+M} a_m \quad (3.22)$$

$$S_{\sigma_f, l}(E) = \frac{\partial \sigma_f}{\partial a_l}(E) \cdot \frac{a_l}{\sigma_f}(E) = 1 ; \quad \forall l \in [1; L] \text{ et } l'energie (E) \quad (3.23)$$

$$S_{\sigma_f, m}(E) = \frac{\partial \sigma_f}{\partial a_m}(E) \cdot \frac{a_m}{\sigma_f}(E) = -1 ; \quad \forall m \in [L+1; L+M] \text{ et } l'energie (E) \quad (3.24)$$

avec

- L représente le nombre de paramètres du numérateur de la section efficace de fission.
- M représente le nombre de paramètres du dénominateur de la section efficace de fission.
- $p = L + M$, nombre de paramètres de la section efficace de fission

Ainsi, on retrouve un résultat trivial, les sensibilités d'un produit de p termes sont toutes égales (en valeur absolue) de sorte que chaque terme ait la même importance. Cette simple affirmation rend compte de l'obligation de traiter avec le même degré de précision toutes les grandeurs relatives à la section efficace de fission. La variance de la section efficace de fission se réécrit alors

¹ Les surfaces de cibles d' ^{243}Am ($S_{Am1/2}$) interviennent implicitement dans la formulation de la section efficace de fission (eq.3.3). Dans le paragraphe (§3.2.3), nous avons montré que l'erreur sur la surface de la cible n'a pas de conséquence notable sur le calcul de la section efficace de fission. En complément de ce qui a été écrit, nous pouvons déduire la sensibilité de la section efficace de fission à la surface de la cible : $S_{\sigma_f, S_{Am1}} = -0,003 \text{ \%/\%}$; $S_{\sigma_f, S_{Am2}} = -0,002 \text{ \%/\%}$. L'erreur (relative) sur la surface ($S_{Am1/2}$) étant de l'ordre de 3%, l'erreur (relative) induite sur la section efficace de fission est de l'ordre de 0,01%. Cette erreur étant très inférieure à l'erreur attendue sur la section efficace de fission, nous négligerons l'impact de ce paramètre dans la suite du calcul.

simplement :

$$\begin{aligned} \frac{Var(\sigma_f)}{(\sigma_f)^2} = & \sum_{k=1}^p \frac{Var(a_k)}{a_k^2} + 2 \sum_{1 \leq k' < k}^L \frac{Cov(a_k; a_{k'})}{a_k \cdot a_{k'}} \\ & + 2 \sum_{L+1 \leq k' < k}^p \frac{Cov(a_k; a_{k'})}{a_k \cdot a_{k'}} - 2 \cdot \sum_{1 \leq k < L; L+1 \leq k' < p} \frac{Cov(a_k; a_{k'})}{a_k \cdot a_{k'}} \quad (3.25) \end{aligned}$$

Le premier terme correspond à la somme quadratique des erreurs relatives discutées au cas par cas dans les paragraphes précédents (cf tab.3.4). Reste alors à regarder les termes de covariance des différents paramètres de l'équation (3.3). On peut distinguer trois groupes :

- $\{N_f; N_p\}$: le premier groupe de paramètres porte sur les taux de détection ; mesurés indépendamment avec des détecteurs différents, il n'y a pas de terme de covariance entre ces deux grandeurs.
- $(\Omega_{n-pp}; \Omega_{n-Am})$: ce terme est probablement le plus délicat. Il implique une bonne connaissance de la localisation de la source de neutrons à partir de laquelle sont mesurées les positions respectives des cibles d' ^{243}Am et du film hydrogéné. Ces deux dernières quantités sont donc nécessairement corrélées.
- $\{\epsilon_p^{sim}; N_H; \epsilon_f; \epsilon_{int}; N_{Am}; \overline{\sigma_{(n,p)}}\}$: le dernier groupe de paramètres décrit les éléments systématiques propres à la méthode et au dispositif. Ces termes ont tous été évalués indépendamment par des mesures expérimentales séparées ou par des calculs ou simulations. Ils sont donc indépendants et leurs covariances deux à deux sont nulles

Dans le tableau de corrélations des paramètres présenté ci-dessous (tab. 3.6), on remarquera qu'il n'y a pas de corrélation entre les trois groupes de paramètres. En effet, si les taux de comptage obtenus (N_f et N_p) sont proportionnels aux efficacités de détection et aux épaisseurs des cibles, en revanche les erreurs associées à ces grandeurs sont naturellement non corrélées puisqu'elles ont fait l'objet de mesures indépendantes.

a_k / $a_{k'}$	N_f	N_p	N_{Am}	N_H	ϵ_f	ϵ_{int}	ϵ_p^{sim}	$\overline{\sigma_{(n,p)}}$	Ω_{n-Am}	Ω_{n-pp}
N_f	$\sigma_{N_f}^2$	0				0				0
N_p	0	$\sigma_{N_p}^2$				0				0
N_{Am}			$\sigma_{N_{Am}}^2$							
N_H				$\sigma_{N_H}^2$				0		
ϵ_f		0			$\sigma_{\epsilon_f}^2$					0
ϵ_{int}						$\sigma_{\epsilon_{int}}^2$				
ϵ_p^{sim}							$\sigma_{\epsilon_p^{sim}}^2$			
$\overline{\sigma_{(n,p)}}$								$\sigma_{\overline{\sigma_{(n,p)}}}^2$		
Ω_{n-Am}	0					0			$\sigma_{\Omega_{n-Am}}^2$	$Cov(\Omega_{Am}; \Omega_{pp})$
Ω_{n-pp}	0					0			$Cov(\Omega_{Am}; \Omega_{pp})$	$\sigma_{\Omega_{n-pp}}^2$
$S_{\sigma_f, k}$	1	-1	-1	1	-1	-1	1	1	-1	1

TAB. 3.6 – Tableau des corrélations et des sensibilités des paramètres de la section efficace de fission de $l^{243}\text{Am}$.

La relation (eq.3.25) peut alors s'écrire :

$$\frac{Var(\sigma_f)}{(\sigma_f)^2} = \sum_{k=1}^p \frac{Var(a_k)}{a_k^2} - 2 \cdot \frac{Cov(\Omega_{n-pp}; \Omega_{n-Am})}{\Omega_{n-pp} \cdot \Omega_{n-Am}} \quad (3.26)$$

Dans cette expression (eq.3.26), il apparaît un terme de covariance lié à la définition des erreurs des angles solides, lesquelles sont ramenées à la source de neutrons. Pour les cibles solides et les cibles gazeuses, l'incertitude est d'origine mécanique car il est difficile de mesurer à mieux que 0,5 mm la distance séparant la face de sortie des sources des cibles d'américium ^{243}Am ou du polypropylène (PP). Cette incertitude se propage simultanément sur le calcul des angles solides Ω_{n-Am} et Ω_{n-pp} avec les erreurs respectives $\sigma_{\Omega_{n-Am}}$ et $\sigma_{\Omega_{n-pp}}$. Ce terme de covariance est compris entre les valeurs suivantes :

$$- \sigma_{\Omega_{n-pp}} \cdot \sigma_{\Omega_{n-Am}} \leq Cov(\Omega_{n-pp}; \Omega_{n-Am}) \leq \sigma_{\Omega_{n-pp}} \cdot \sigma_{\Omega_{n-Am}} \quad (3.27)$$

A la corrélation des angles solides près, on retrouve une incertitude totale égale à la somme des termes diagonaux de la matrice de variances-covariances. Il est possible d'exprimer la variance de la section efficace de fission en une somme d'erreurs statistiques et systématiques :

$$\frac{Var(\sigma_f)}{\sigma_f^2} = \left(\frac{Var(\sigma_f)}{\sigma_f^2} \right)^{statistique} + \left(\frac{Var(\sigma_f)}{\sigma_f^2} \right)^{systematique} \quad (3.28)$$

où

- $\left(\frac{Var(\sigma_f)}{\sigma_f^2} \right)^{statistique}$ représente la variance statistique de la section efficace
- $\left(\frac{Var(\sigma_f)}{\sigma_f^2} \right)^{systematique}$ représente la variance systématique de la section efficace

$$\left(\frac{\text{Var}(\sigma_f)}{\sigma_f^2}\right)^{\text{statistique}} = \frac{\text{Var}(N_f)}{(N_f)^2} + \frac{\text{Var}(N_p)}{(N_p)^2} \quad (3.29)$$

$$\begin{aligned} \left(\frac{\text{Var}(\sigma_f)}{\sigma_f^2}\right)^{\text{systematique}} &= \frac{\text{Var}(\Omega_{n-pp})}{(\Omega_{n-pp})^2} + \frac{\text{Var}(\Omega_{n-Am})}{(\Omega_{n-Am})^2} \\ &+ \frac{\text{Var}(\epsilon_p^{\text{sim}})}{(\epsilon_p^{\text{sim}})^2} + \frac{\text{Var}(\epsilon_f)}{(\epsilon_f)^2} + \frac{\text{Var}(\epsilon_{\text{int}})}{(\epsilon_{\text{int}})^2} \\ &+ \frac{\text{Var}(N_{\text{am}})}{(N_{\text{am}})^2} + \frac{\text{Var}(N_H)}{(N_H)^2} + \frac{\text{Var}(\overline{\sigma_{(n,p)}})}{(\overline{\sigma_{(n,p)}})^2} \\ &- 2 \cdot \frac{\text{Cov}(\Omega_{n-pp}; \Omega_{n-Am})}{\Omega_{n-pp} \cdot \Omega_{n-Am}} \end{aligned} \quad (3.30)$$

Dans les paragraphes qui suivent, nous allons détailler l'analyse de l'erreur sur la section efficace moyenne de diffusion (n,p) et des erreurs statistiques. Les autres termes apparaissant dans la variance systématique (eq.3.30) sont indiqués dans le tableau récapitulatif de l'expérience (§3.1.4 tab.3.4).

3.3.4 Erreurs statistiques des événements fissions et protons - Sensibilités

Dans l'analyse du spectre de protons de recul (§3.2.2.a), le nombre de protons détectés doit être corrigé du bruit de fond dû au télescope. Le nombre de protons relatif au flux de neutrons (N_p) s'écrit :

$$N_p = N_{on} - f_{norm} \cdot N_{off} \quad (3.31)$$

où

- N_{on} correspond aux protons de recul enregistrés pendant une mesure de flux (mode PPon)
- N_{off} correspond aux protons de recul enregistrés pendant une mesure de bruit de fond (mode PPoff)
- f_{norm} est le facteur de normalisation obtenu par le moniteur neutrons N_n^{moniteur} (ou la charge Q (cf.§3.1.4)) : $f_{norm} = \frac{N_{n-PPon}^{\text{moniteur}}}{N_{n-PPoff}^{\text{moniteur}}} = \frac{Q_{PPon}}{Q_{PPoff}}$

L'indépendance des trois termes $\{N_{on}; N_{off}; f_{norm}\}$ implique des covariances nulles entre ces paramètres. On peut en déduire l'erreur sur le nombre de protons mesuré relatif au flux de

neutrons en appliquant la relation (eq. 3.10) :

$$\begin{aligned}
 \frac{Var(N_p)}{(N_p)^2} &= [S_{N_p, N_{on}}]^2 \cdot \frac{Var(N_{on})}{(N_{on})^2} \\
 &+ [S_{N_p, N_{off}}]^2 \cdot \frac{Var(N_{off})}{(N_{off})^2} \\
 &+ [S_{N_p, f_{norm}}]^2 \cdot \frac{Var(f_{norm})}{(f_{norm})^2}
 \end{aligned} \tag{3.32}$$

Les facteurs de sensibilité des différents termes, pour chaque mesure en énergie de neutrons (E_n), s'écrivent alors :

$$S_{N_p, N_{on}} = \frac{\partial N_p}{\partial N_{on}} \cdot \frac{N_{on}}{N_p} = \frac{N_{on}}{N_p} \tag{3.33}$$

$$S_{N_p, N_{off}} = \frac{\partial N_p}{\partial N_{off}} \cdot \frac{N_{off}}{N_p} \tag{3.34}$$

$$S_{N_p, f_{norm}} = \frac{\partial N_p}{\partial f_{norm}} \cdot \frac{f_{norm}}{N_p} \tag{3.35}$$

$$S_{N_p, N_{off}} = S_{N_p, f_{norm}} = - \frac{f_{norm} \cdot N_{off}}{N_p} \tag{3.36}$$

Le tableau (tab. 3.7) donne les sensibilités pour les différentes mesures en énergie de neutrons réalisées. Les calculs de sensibilités (cf.tab.3.7) mettent un nombre sur une évidence non-quantifiée jusqu'ici : la faible proportion des réactions parasites au niveau du pic proton, rend la mesure de flux de neutrons par cette méthode particulièrement adaptée à la mesure de sections efficaces induites par neutrons. De plus, les mesures de bruit de fond ont des durées similaires aux mesures de flux, ce qui permet de ne pas donner d'importance majeure au spectre de bruit de fond comme au facteur de normalisation.

E_n (MeV)	N_{on} ($\times 10^4$)	$f_{norm} \cdot N_{off}$ ($\times 10^3$)	f_{norm}	N_p ($\times 10^4$)	$S_{N_p, N_{on}}$ (%/%)	$S_{N_p, N_{off}}$ (%/%)	$\frac{\sigma(N_p)}{N_p}$ (%)
1,84	3,18	3,90	1,38	2,79	1,14	0,14	0,74
2,36	2,11	2,64	1,39	1,85	1,14	0,14	0,88
2,88	16,2	9,52	1,41	16,1	1,01	0,06	0,28
2,88	10,6	4,71	1,6	10,2	1,05	0,05	0,34
3,39	7,27	3,15	1,05	6,96	1,05	0,05	0,41
5,12	66,1	113,	0,77	54,8	1,21	0,20	0,43
5,72	22,0	12,5	2,53	20,8	1,06	0,06	0,27
6,82	33,4	1,22	2,62	33,3	1,00	0,04	0,19
7,35	4,94	1,89	1,4	4,75	1,04	0,04	0,49
6,00	3,10	1,62	1,56	2,94	1,06	0,05	0,63
6,21	2,86	1,05	0,98	2,75	1,04	0,04	0,63
4,80	8,02	4,75	0,82	7,55	1,06	0,06	0,40
4,10	3,36	2,86	0,97	3,08	1,09	0,09	0,64
3,63	2,72	1,51	0,92	2,57	1,06	0,06	0,67

TAB. 3.7 – Tableau des sensibilités (S) en fonction des énergies de neutrons (E_n).

En remplaçant les termes de sensibilité dans l'équation précédente (eq.3.32), on obtient l'écart type du nombre de protons diffusés :

$$\frac{\sigma(N_p)}{N_p} = \sqrt{\frac{N_{on}}{(N_p)^2} + f_{norm}^2 \cdot \frac{N_{off}}{(N_p)^2} + \left(\frac{N_{off}}{N_p}\right)^2 \cdot (\sigma_{f_{norm}})^2} \quad (3.37)$$

Pour minimiser le second terme de l'équation (eq. 3.37), il faut un facteur de normalisation inférieur à l'unité, ce qui implique des mesures de bruit de fond plus importantes que les mesures directes (PPon). Cette méthodologie habituelle pour la soustraction de spectre de bruit de fond possède une limite fournie par la sensibilité du résultat à la soustraction $S_{N_p, N_{off}}$: un taux de réaction parasite faible implique une erreur statistique grande, mais un facteur de sensibilité faible contrebalançant l'erreur statistique. De même, dans notre cas, l'incertitude sur le facteur de normalisation² ($\sigma_{f_{norm}}$) est compensée par la faible sensibilité du résultat à la soustraction du bruit de fond ($S_{N_p, f_{norm}} \ll 1$).

Le tableau (tab. 3.8) regroupe les taux de comptage en fragments de fission et en protons obtenus pour les différentes énergies de neutrons ainsi que les erreurs statistiques associées.

²Pour certaines énergies de neutrons, la statistique obtenue est le résultat de plusieurs mesures. Il est alors possible de vérifier la dispersion du rapport du nombre de neutrons (mesuré par le moniteur) sur le nombre de fragments de fission détectés. Cette fluctuation nous donne une estimation de la dispersion du facteur de normalisation $\sigma_{f_{norm}} = \sqrt{\text{Var}(f_{norm})} \lesssim 2\%$.

E_n (MeV)	N_f	N_p ($\times 10^4$)	$\frac{\sigma(N_f)}{N_f}$ (%)	$\frac{\sigma(N_p)}{N_p}$ (%)	$\frac{\sigma\left(\frac{N_f}{N_p}\right)}{\frac{N_f}{N_p}}$ (%)	épaisseur du polypropylène (μm)
1,84	13901	2,79	0,85	0,74	1,12	10
2,36	11332	1,85	0,94	0,88	1,29	10
2,88	11086	16,1	0,95	0,28	0,99	10
2,88	36001	10,2	0,53	0,34	0,63	20
3,39	26050	6,96	0,62	0,41	0,74	20
5,12	59120	54,8	0,41	0,43	0,60	50
5,72	26209	20,8	0,62	0,27	0,67	50
6,82	6292	33,3	1,26	0,19	1,27	50
7,35	10292	4,75	0,99	0,49	1,10	50
6,00	3516	2,94	1,69	0,63	1,80	50
6,21	3092	2,75	1,80	0,63	1,91	50
4,80	4996	7,55	1,41	0,40	1,47	50
4,10	2432	3,08	2,03	0,64	2,13	50
3,63	1897	2,57	2,30	0,67	2,39	50

TAB. 3.8 – Tableau regroupant les taux de comptage et leurs erreurs associées pour les différentes mesures en énergie de neutrons (E_n). A noter que $\sigma\left(\frac{N_f}{N_p}\right)/\left(\frac{N_f}{N_p}\right)$ représente l'erreur statistique de la section efficace de fission à l'énergie E_n .

3.3.5 Erreurs systématiques de la section efficace de diffusion (n,p)

La distribution en énergie du flux de neutrons est obtenue par la simulation de l'interaction du faisceau de protons ou de deutons avec les cibles de tritium ou de deutérium. Pour la réaction utilisant le deutérium gazeux, nous avons indiqué la présence d'une fenêtre de molybdène pour séparer le gaz de deutérium du vide de l'accélérateur. L'incertitude sur l'épaisseur de cette fenêtre mince génère une erreur systématique sur l'énergie du faisceau incident et donc indirectement sur l'énergie moyenne du flux de neutrons. Dès lors, il est nécessaire de propager cette erreur systématique à la section efficace de diffusion (n,p) moyenne (eq.2.17). En considérant une incertitude systématique en énergie de neutrons $(\Delta E_n)^{syst}$ liée à l'erreur sur la perte d'énergie des deutons dans la fenêtre de molybdène, on peut écrire :

$$\frac{\sigma_{(n,p)}^{tot}}{\sigma_{(n,p)}} = \sqrt{\left(\frac{\Delta_{\sigma_{(n,p)}}^{syst}}{\sigma_{(n,p)}}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{\sigma_{(n,p)}}^{eval}}{\sigma_{(n,p)}}\right)^2} \quad (3.38)$$

$$avec \quad \Delta_{\sigma_{(n,p)}}^{syst} = \frac{d\sigma_{(n,p)}}{dE_n}(E_n) \cdot (\Delta E_n)^{syst} \quad (3.39)$$

où

- $\Delta\sigma_{(n,p)}^{syst}$ est la variation de la section efficace de diffusion élastique (n,p) résultant de l'écart systématique à l'énergie moyenne des neutrons $(\Delta E_n)^{syst}$;
- $\sigma_{(n,p)}^{tot}$ est l'erreur totale sur la section efficace de diffusion élastique (n,p) ;
- $\sigma_{(n,p)}^{eval}$ est l'erreur sur la section efficace évaluée de la diffusion élastique (n,p) (cf. tab.2.1).

Le tableau (tab. 3.9) fournit les erreurs sur la section efficace de diffusion (n,p). On constate que l'erreur totale est proche de 0,5%

	$\langle E_n \rangle$ (MeV)	ΔE_n (MeV)	ΔE_n^{syst} (MeV)	$\frac{d\sigma_{(n,p)}}{dE_n}(E_n)$ (b/MeV)	$\frac{\sigma_{(n,p)}^{syst}}{\sigma_{(n,p)}}$ %	$\frac{\sigma_{(n,p)}^{eval}}{\sigma_{(n,p)}}$ %	$\frac{\sigma_{(n,p)}^{tot}}{\sigma_{(n,p)}}$ %
Geel	5,12	0,074	0,040	0,231	0,55	0,30	0,63
	5,72	0,059	0,040	0,190	0,49	0,30	0,57
	6,82	0,045	0,040	0,137	0,41	0,36	0,55
	7,35	0,042	0,040	0,127	0,40	0,36	0,54
AIFIRA	6,00	0,050	0,005	0,170	0,06	0,30	0,31
	6,21	0,042	0,005	0,161	0,06	0,36	0,36
	4,70	0,074	0,027	0,261	0,40	0,30	0,50
	4,07	0,117	0,034	0,324	0,56	0,30	0,63
	3,59	0,198	0,039	0,375	0,70	0,22	0,74

TAB. 3.9 – Erreurs sur la section efficace de diffusion élastique (n,p). Dans ce tableau $\langle E_n \rangle$ est l'énergie moyenne du flux de neutrons, ΔE_n la résolution en énergie de la mesure, ΔE_n^{syst} l'erreur systématique sur la mesure.

3.3.6 Corrélations des erreurs d'une série de mesures

Maintenant que l'on dispose de l'erreur sur une mesure de section efficace différentielle pour chaque mesure à l'énergie E_n , il reste à évaluer la corrélation des erreurs en fonction de l'énergie. On peut rappeler que les mesures ont été effectuées auprès de deux accélérateurs (VdG-Geel, AIFIRA-CENBG). Les neutrons sont produits à partir de deux réactions (p+T & d+D). Le même dispositif a été utilisé pour tous les points en énergie. Treize points de section efficace de fission ont été mesurés dont 8 points à Geel et 5 à AIFIRA. Chaque point de mesure dépend de dix paramètres décrits précédemment (§ 3.3.3) c'est-à-dire les taux de comptage (en protons de recul et en fissions) et les huit paramètres propres au dispositif (facteurs géométriques et quantités de matière). Les taux de comptage d'une mesure à une autre n'étant pas corrélés, s'il y a corrélation entre deux points de mesures, celle-ci intervient par le biais des huit paramètres propres au montage. Nous avons regroupé dans le tableau ci-dessous (tab. 3.10) les paramètres

communs à une série de mesures (diagonale du tableau) et les paramètres communs entre deux séries de mesures différentes (éléments non diagonaux). Trois séries de mesures sont identifiées et les mesures de section efficace de fission dépendent des sept paramètres. En revanche cinq paramètres communs et leurs erreurs se propagent entre deux séries.

	Geel		AIFIRA
E_i / E_j	$T(p, n)^3\text{He}$	$D(d, n)^3\text{He}$	$D(d, n)^3\text{He}$
Série n°1 Geel $T(p, n)^3\text{He}$	$\{N_{Am}, N_H, \overline{\sigma_{(n,p)}}\}$ $\{\epsilon_f, \epsilon_p^{sim}\}$ $\{\Omega_{n-Am}, \Omega_{n-pp}, \epsilon_{int}\}^1$	$\{N_{Am}, N_H, \overline{\sigma_{(n,p)}}\}$ $\{\epsilon_f, \epsilon_p^{sim}\}$	$\{N_{Am}, N_H, \overline{\sigma_{(n,p)}}\}$ $\{\epsilon_f, \epsilon_p^{sim}\}$
Série n°2 Geel $D(d, n)^3\text{He}$	$\{N_{Am}, N_H, \overline{\sigma_{(n,p)}}\}$ $\{\epsilon_f, \epsilon_p^{sim}\}$	$\{N_{Am}, N_H, \overline{\sigma_{(n,p)}}\}$ $\{\epsilon_f, \epsilon_p^{sim}\}$ $\{\Omega_{n-Am}, \Omega_{n-pp}, \epsilon_{int}\}$	$\{N_{Am}, N_H, \overline{\sigma_{(n,p)}}\}$ $\{\epsilon_f, \epsilon_p^{sim}\}$
Série n°3 AIFIRA $D(d, n)^3\text{He}$	$\{N_{Am}, N_H, \overline{\sigma_{(n,p)}}\}$ $\{\epsilon_f, \epsilon_p^{sim}\}$	$\{N_{Am}, N_H, \overline{\sigma_{(n,p)}}\}$ $\{\epsilon_f, \epsilon_p^{sim}\}$	$\{N_{Am}, N_H, \overline{\sigma_{(n,p)}}\}$ $\{\epsilon_f, \epsilon_p^{sim}\}$ $\{\Omega_{n-Am}, \Omega_{n-pp}, \epsilon_{int}\}$

TAB. 3.10 – Tableau de propagation des erreurs sur les paramètres de la section efficace de fission de $l^{243}\text{Am}$ entre les différentes séries de mesures.

On pose $\sigma_{n,f}(E_i) = \sigma_i$ et $\sigma_{n,f}(E_j) = \sigma_j$. On peut alors écrire la relation générale de la covariance de deux mesures (eq. 3.20) :

$$\begin{aligned}
Cov(\sigma_i; \sigma_j) &= \sigma_i \sigma_j \sum_{k=1}^{p'} S_{ik} S_{jk} \frac{Var(a_k)}{(a_k)^2} \\
&+ \sigma_i \sigma_j \sum_{1 \leq k < k'}^{p'} \left(S_{ik} S_{jk'} + S_{ik'} S_{jk} \right) \frac{Cov(a_k; a_{k'})}{a_k \cdot a_{k'}}
\end{aligned} \quad (3.40)$$

$$avec \quad S_{ik} = \frac{\partial \sigma_i}{\partial a_k} \cdot \frac{a_k}{\sigma_i} \quad (3.41)$$

$$S_{jk} = \frac{\partial \sigma_j}{\partial a_k} \cdot \frac{a_k}{\sigma_j} \quad (3.42)$$

où p' est le nombre de paramètres distincts aux deux observables σ_i et σ_j (cf eq.3.16) :

- pour deux mesures au sein d'une même série de mesures $p' = 12$:
 $\{a_k\}_{k=1,p'} = \{ N_{Am}; N_H; \overline{\sigma_{(n,p)}}; \epsilon_f; \epsilon_{int}; \epsilon_p^{sim}; \Omega_{n-Am}; \Omega_{n-pp}; N_f^i; N_p^i; N_f^j; N_p^j \};$
- pour deux mesures de deux séries différentes $p' = 15$:
 $\{a_k\}_{k=1,p'} = \{ N_{Am}; N_H; \overline{\sigma_{(n,p)}}; \epsilon_f; \epsilon_{int}^i; \epsilon_{int}^j; \epsilon_p^{sim}; \Omega_{n-Am}^i; \Omega_{n-pp}^i; \Omega_{n-Am}^j; \Omega_{n-pp}^j; N_f^i; N_p^i; N_f^j; N_p^j \}.$

¹(tab.3.10) - Les cellules photovoltaïques ont été remplacées pour chaque série de mesures. L'erreur sur l'efficacité intrinsèque (ϵ_{int}) ne se propage donc pas entre les différentes séries de mesures.

On a vu au paragraphe (§3.3.3) que les paramètres $\{a_k\}$ sont indépendants entre eux à une énergie donnée à l'exception des angles solides des cibles d'américium Ω_{n-Am} et de polypropylène Ω_{n-pp} . L'indépendance des paramètres à une énergie donnée se généralise à deux énergies différentes pour les mêmes raisons évoquées précédemment. On peut donc écrire :

- pour deux mesures au sein d'une même série de mesures :

$$\begin{aligned} \text{Cov}(a_k; a_{k'}) &= 0 \text{ avec } 1 \leq k < k' \leq p' \text{ si } a_k \neq \{\Omega_{n-Am}; \Omega_{n-pp}\} \\ |\text{Cov}(\Omega_{n-pp}; \Omega_{n-Am})| &\leq \sigma_{\Omega_{n-pp}} \cdot \sigma_{\Omega_{n-Am}} ; \end{aligned}$$
- pour deux mesures de deux séries différentes :

$$\begin{aligned} \text{Cov}(a_k; a_{k'}) &= 0 \text{ avec } 1 \leq k < k' \leq p' \text{ si } a_k \neq \{\Omega_{n-Am}^i; \Omega_{n-pp}^i; \Omega_{n-Am}^j; \Omega_{n-pp}^j\} \\ |\text{Cov}(\Omega_{n-pp}^i; \Omega_{n-Am}^i)| &\leq \sigma_{\Omega_{n-pp}^i} \cdot \sigma_{\Omega_{n-Am}^i} ; \\ |\text{Cov}(\Omega_{n-pp}^j; \Omega_{n-Am}^j)| &\leq \sigma_{\Omega_{n-pp}^j} \cdot \sigma_{\Omega_{n-Am}^j} ; \\ \text{Cov}(\Omega_{n-pp}^i; \Omega_{n-Am}^j) &= \text{Cov}(\Omega_{n-pp}^j; \Omega_{n-Am}^i) = 0 ; \end{aligned}$$

De plus, seuls les paramètres communs aux deux mesures ont des sensibilités non nulles :

- $S_{ik} = S_{jk} = \pm 1$; $S_{ik} \cdot S_{jk} = 1$ si a_k est un paramètre commun à σ^i et σ^j ;
- $S_{ik} = \pm 1$ et $S_{jk} = 0$ si a_k est un paramètre propre à σ^i ;
- $S_{ik} = 0$ et $S_{jk} = \pm 1$ si a_k est un paramètre propre à σ^j .

On peut donc sommer uniquement sur les paramètres communs (p_c) aux deux mesures σ^i et σ^j de la relation (eq.3.40) :

$$p_c = \text{Card}\left\{\{a_k^i / i = [1, p_i]\} \cap \{a_k^j / j = [1, p_j]\}\right\} \quad (3.43)$$

On définit alors la covariance de deux mesures par les équations suivantes :

- pour deux mesures au sein d'une même série de mesures $p_c = 8$:

$$\{a_k\}_{k=1, p_c} = \{N_{Am}; N_H; \overline{\sigma_{(n,p)}}; \epsilon_f; \epsilon_{int}; \epsilon_p^{sim}; \Omega_{n-Am}; \Omega_{n-pp}\}$$

$$\text{Cov}(\sigma_i; \sigma_j) = \sigma_i \sigma_j \left\{ \sum_{k=1}^{p_c} \frac{\text{Var}(a_k)}{(a_k)^2} - 2 \cdot \frac{\text{Cov}(\Omega_{n-pp}; \Omega_{n-Am})}{\Omega_{n-pp} \cdot \Omega_{n-Am}} \right\} \quad (3.44)$$

- pour deux mesures de deux séries différentes $p'_c = 5$:

$$\{a_k\}_{k=1, p'_c} = \{N_{Am}; N_H; \overline{\sigma_{(n,p)}}; \epsilon_f; \epsilon_p^{sim}\}$$

$$\text{Cov}(\sigma_i; \sigma_j) = \sigma_i \sigma_j \sum_{k=1}^{p'_c} \frac{\text{Var}(a_k)}{(a_k)^2} \quad (3.45)$$

Dans un second temps, pour deux mesures d'une même série, on remarquera que le produit des écarts types systématiques (cf. eq.3.30) s'écrit³ :

$$\sigma_{(\sigma_i)}^{syst} \cdot \sigma_{(\sigma_j)}^{syst} = \sqrt{Var(\sigma_i)^{syst} \cdot Var(\sigma_j)^{syst}} \quad (3.46)$$

$$= \sigma_i \cdot \sigma_j \left\{ \sum_{k=1}^{p_{syst}} \frac{Var(a_k)}{(a_k)^2} - 2 \cdot \frac{Cov(\Omega_{n-pp}; \Omega_{n-Am})}{\Omega_{n-pp} \cdot \Omega_{n-Am}} \right\} \quad (3.47)$$

où $\sigma_{(\sigma_i)}^{syst} = \sqrt{Var(\sigma_i)^{syst}}$ est l'écart type systématique de la mesure de section efficace σ_i à l'énergie E_i ; idem pour la mesure à l'énergie E_j . En observant que p_{syst} représente aussi l'ensemble des paramètres communs aux deux mesures :

$$p_{syst} = p_c \quad (3.48)$$

D'après les équations (eq.3.44) (eq.3.47) et (eq.3.48), la covariance de deux mesures d'une même série, σ_i et σ_j , est égale au produit des erreurs systématiques de chaque mesure.

$$Cov(\sigma_i; \sigma_j) = \sigma_{(\sigma_i)}^{syst} \cdot \sigma_{(\sigma_j)}^{syst} \quad (3.49)$$

Pour des mesures de deux séries différentes (eq.3.45), la covariance des deux mesures σ_i et σ_j est la somme des variances des paramètres $\{a_k\}_{k=1, p'_c}$. les angles solides ne sont plus des paramètres communs aux deux mesures de sorte que l'on retrouve la relation précédente :

$$Cov(\sigma_i; \sigma_j) = \sigma_{(\sigma_i)}^{syst'} \cdot \sigma_{(\sigma_j)}^{syst'} \quad (3.50)$$

où $\sigma_{(\sigma_i/j)}^{syst'}$ est l'erreur systématique de la mesure i, ou j, associée aux paramètres $\{a_k\}_{k=1, p'_c} = \{N_{Am}; N_H; \overline{\sigma_{(n,p)}}; \epsilon_f; \epsilon_p^{sim}\}$.

La corrélation entre les deux mesures σ_i et σ_j est alors définie comme le rapport de la covariance sur le produit des écarts types des deux mesures, respectivement, $\sqrt{Var(\sigma_i)}$ et $\sqrt{Var(\sigma_j)}$. La matrice de corrélation correspond à la matrice de variances-covariances normalisée à l'unité sur la diagonale ; les éléments de matrices sont donc sans dimension. On s'attend donc à obtenir des corrélations entre les différentes mesures comprises entre -1 et +1. Dans notre cas, selon les équations (eq.3.44) et (eq.3.45), la covariance $Cov(\sigma_i; \sigma_j)$ est définie positive⁴.

$$Corr(\sigma_i; \sigma_j) = \frac{Cov(\sigma_i; \sigma_j)}{\sqrt{Var(\sigma_i)} \cdot \sqrt{Var(\sigma_j)}} \geq 0 \quad (3.51)$$

³Pour deux mesures d'une même série, les erreurs systématiques sont égales : $\sigma_{(\sigma_i)}^{syst} = \sigma_{(\sigma_j)}^{syst}$

⁴∀ $\sigma_{\Omega_{n-pp}}$ et $\sigma_{\Omega_{n-Am}}$ alors : $2 \cdot \frac{Cov(\Omega_{n-pp}; \Omega_{n-Am})}{\Omega_{n-pp} \cdot \Omega_{n-Am}} \leq 2 \cdot \frac{\sigma_{\Omega_{n-pp}} \cdot \sigma_{\Omega_{n-Am}}}{\Omega_{n-pp} \cdot \Omega_{n-Am}} \leq \frac{\sigma_{\Omega_{n-Am}}^2}{\Omega_{n-Am}^2} + \frac{\sigma_{\Omega_{n-pp}}^2}{\Omega_{n-pp}^2}$

3.4 Mesures complémentaires

L'objectif du travail effectué sur la section efficace de fission de ^{243}Am est de fournir de nouvelles mesures indépendantes des mesures existantes afin de déceler les biais systématiques de ces données. Toutefois, chaque série de mesures sur une installation donnée a ses propres erreurs systématiques liées au montage, aux cibles utilisées et à la source de neutrons. Ces erreurs, indépendantes des erreurs sur les réactions standards utilisées, sont probablement responsables du désaccord des données existantes. Pour cela, nous avons choisi de réaliser des mesures complémentaires de la section efficace de fission de ^{243}Am en référence à la section efficace de fission de ^{238}U avec le même dispositif (cf.fig.3.15). Seule une mesure à $E_n = 14,5$ MeV [Fo67] en référence à ce noyau fertile existe, il est donc intéressant de réaliser quelques points de mesures bien choisis pour confirmer nos résultats. Dans cette expérience, nous avons remplacé une cible

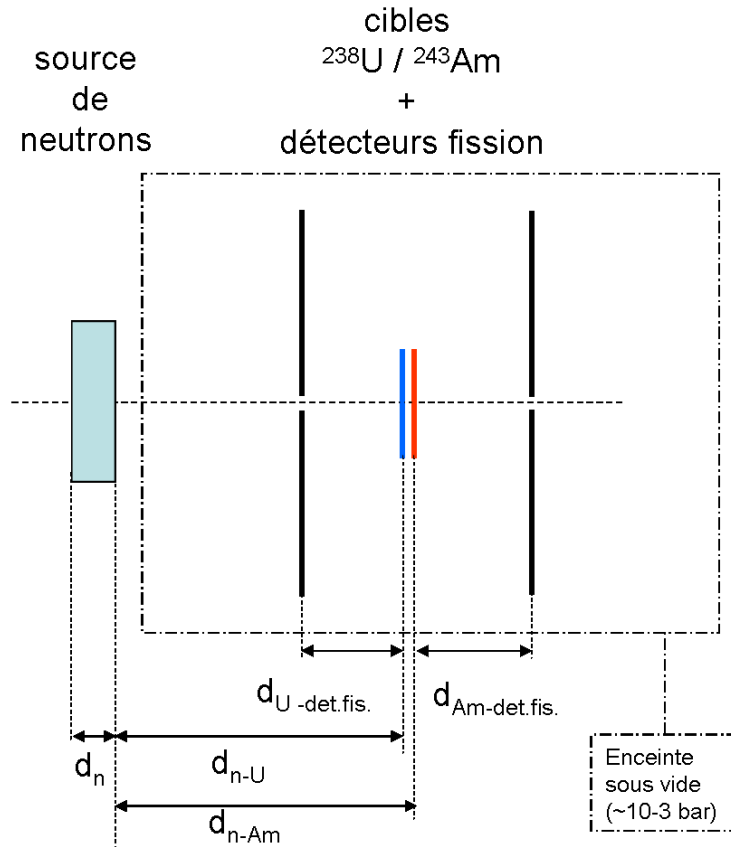


FIG. 3.15 – Dispositif expérimental des mesures de section efficace de fission de ^{243}Am en référence à la section efficace de fission de ^{238}U .

de ^{243}Am par une cible de ^{238}U dans la même chambre à réaction. Les deux cibles sont montées dos à dos pour être peu sensibles aux effets géométriques. Les mesures ont été réalisées sur AI-

FIRA (juin 2008) avec une source de neutrons et une électronique en tous points identiques à celles utilisées pour les expériences précédentes. La section efficace de fission de l'américium est obtenue dans le rapport de la section efficace de fission de l' ^{238}U suivant la relation :

$$\sigma_{(n,f)}(^{243}\text{Am})(E_n) = \left(\frac{N_f^{Am}}{N_f^U} \right) \cdot \left(\frac{\Omega_{n-U} \cdot N_U \cdot \epsilon_f^U \cdot \epsilon_{int}^U}{\Omega_{n-Am} \cdot N_{Am} \cdot \epsilon_f^{Am} \cdot \epsilon_{int}^{Am}} \right) \cdot \sigma_{(n,f)}(^{238}\text{U})(E_n) \quad (3.52)$$

où

- N_f^{Am} et N_f^U sont les nombres de fragments de fission détectés pour les cibles d' ^{243}Am et d' ^{238}U ;
- Ω_{n-Am} et Ω_{n-U} sont les angles solides sous-tendus par les cibles d' ^{243}Am et d' ^{238}U par rapport à la source de neutrons ;
- N_{Am} et N_U sont les nombres d'atomes dans les cibles d' ^{243}Am et d' ^{238}U ;
- ϵ_f^{Am} et ϵ_f^U sont les efficacités de détection des fragments de fission ⁵ ;
- ϵ_{int}^{Am} et ϵ_{int}^U sont les efficacités intrinsèques des cellules photovoltaïques ;
- $\sigma_{(n,f)}(^{243}\text{Am})(E_n)$ et $\sigma_{(n,f)}(^{238}\text{U})(E_n)$ sont les sections efficaces de fission de l' ^{243}Am et l' ^{238}U à l'énergie de neutrons E_n .

Quatre mesures ont été réalisées entre $E_n=4$ MeV et $E_n=6$ MeV qui ont nécessités 8 jours de faisceau en raison de la faiblesse de la section efficace de fission de l' ^{238}U (voisine de 0,5 barn) et malgré une efficacité de détection des fragments de fission proche de 70%. Les taux de comptage et les paramètres de l'équation 3.52 sont indiqués dans les tableaux suivants (tab. 3.11 & 3.12).

	E_n (MeV)	N_f^{Am}	N_f^U	$\sigma(\frac{N_f^{Am}}{N_f^U})/(\frac{N_f^{Am}}{N_f^U})$ (%)
Série n°4	4,70	3624	4438	2,24
Série n°5	4,39	2755	3374	2,57
	5,50	10265	11726	1,40
	6,00	6358	7126	1,73

TAB. 3.11 – Nombre de fragments de fission détectés pour les cibles d' ^{238}U et d' ^{243}Am .

⁵Les effets cinématiques sont pris en compte dans le calcul d'efficacité.

paramètres \ X	Am ¹	U
Ω_{n-X}	0,0132 (2%)	0,03894 (2%)
N_X (atomes)	$3,951 \cdot 10^{17}$ (0,5%)	$9,18 \cdot 10^{17}$ (1,5%)
N_X (atomes/cm ²) ²	$1,40 \cdot 10^{18}$	$1,17 \cdot 10^{18}$
$(\epsilon_f^X)_{\text{geometrique}}$	70,2(±1,3) %	66,8(±1,3) %
ϵ_{int}^X	96(±1) %	

TAB. 3.12 – Paramètres de la série de mesures de la section efficace de fission de $l^{243}\text{Am}$ en référence à $l^{238}\text{U}$.

A ces mesures, vient s'ajouter la première expérience effectuée en Master2 [Ke05] basée sur la même méthode mais en référence à la section efficace de fission de $l^{235}\text{U}$. Ces mesures ont été réalisées avec des ensembles cibles et détecteurs de fragments de fission différents de ceux utilisés pour les expériences en référence à la diffusion élastique (n,p) ou à la section efficace de fission de $l^{238}\text{U}$. Ces mesures sont donc indépendantes des résultats obtenus dans ce travail.

	E_n (MeV)	N_f^{Am}	N_f^U	$\sigma(\frac{N_f^{Am}}{N_f^U})/(\frac{N_f^{Am}}{N_f^U})$ (%)
Série n°6	4,00	2365	10272	2,28
	4,59	1982	7998	2,51
	5,31	4416	18989	1,67

TAB. 3.13 – Nombre de fragments de fission détectés pour les cibles $d^{235}\text{U}$ et $d^{243}\text{Am}$.

¹(tab.3.12) La cible d'américium utilisée pour ces mesures est la cible "Am n°2".

²(tab.3.12) Le nombre d'atomes par unité de surface (cm^{-2}) est calculé pour une cible d' ^{243}Am de 6,00 mm de diamètre et une cible d' ^{238}U de 10,00 mm de diamètre. L'analyse des erreurs (cf § 3.2.3) montre que la section efficace de fission ne dépend pas au premier ordre de la surface de la cible.

3.5 Présentation des résultats

3.5.1 Mesures en référence à la diffusion (n,p)

Dans ce travail, nous avons décrit les mesures de la section efficace de fission pour une cible d' ^{243}Am et les erreurs associées à ces mesures. Dans la pratique, nous disposons de deux cibles ayant des caractéristiques similaires. Les résultats présentés sur la figure (fig.3.16) indiquent un très bon accord entre les mesures. Pour six mesures, seuls les résultats d'une cible (Am-1 ou Am-2) ont pu être exploités, les événements de la cible Am-1 n'ont pu être traités à cause d'une défaillance de la chaîne électronique équipant les détecteurs de fission associés.

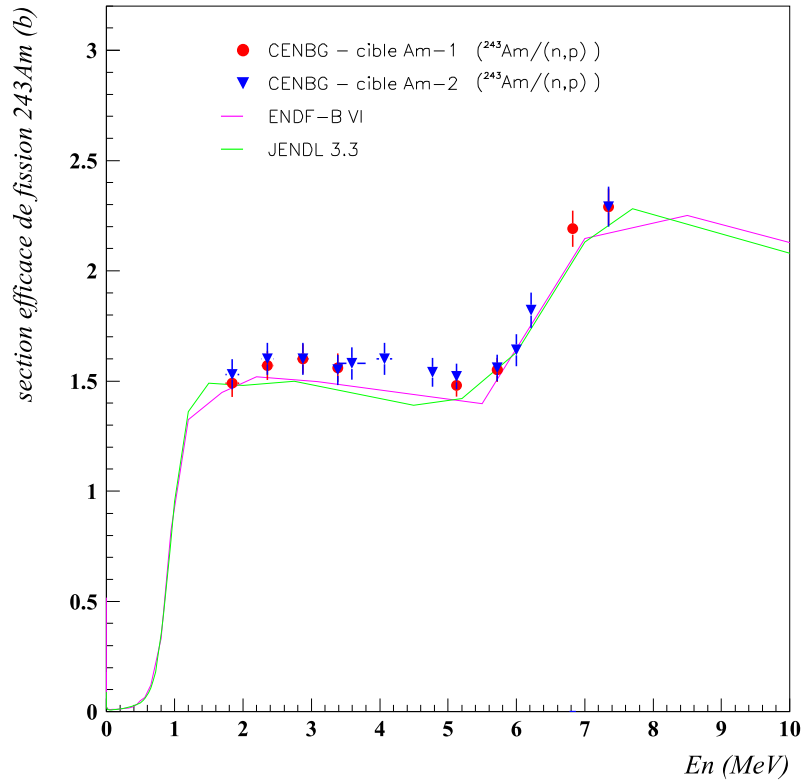


FIG. 3.16 – Mesures de la section efficace de fission de $l^{243}\text{Am}$ obtenues pour chacune des cibles (Am1 et Am2).

Le tableau des variances-covariances des angles solides $\Omega_{n-\text{Am}}$ et $\Omega_{n-\text{pp}}$ (eq.3.27) est présenté ci-dessous (tab.3.14). L'erreur sur le rapport des angles solides intervenant dans l'expression de la section efficace (eq.3.3) est évaluée dans l'intervalle défini par l'équation (eq.3.53). Ainsi, la borne inférieure de cet intervalle prend en compte une corrélation maximale des erreurs des angles

solides ($\text{Corr}(\Omega_{n-pp}; \Omega_{n-Am}) = 1$) ; la borne supérieure suppose une indépendance des erreurs⁶ dans le positionnement des cibles d'américium et du polypropylène ($\text{Corr}(\Omega_{n-pp}; \Omega_{n-Am}) = 0$).

$$\frac{\sigma_{\frac{\Omega_{n-Am}}{\Omega_{n-pp}}}}{\frac{\Omega_{n-Am}}{\Omega_{n-pp}}} \in \left[\left(\frac{\sigma_{\frac{\Omega_{n-Am}}{\Omega_{n-pp}}}}{\frac{\Omega_{n-Am}}{\Omega_{n-pp}}} \right)_{\min} ; \left(\frac{\sigma_{\frac{\Omega_{n-Am}}{\Omega_{n-pp}}}}{\frac{\Omega_{n-Am}}{\Omega_{n-pp}}} \right)_{\max} \right] \quad (3.53)$$

avec

$$\left(\frac{\sigma_{\frac{\Omega_{n-Am}}{\Omega_{n-pp}}}}{\frac{\Omega_{n-Am}}{\Omega_{n-pp}}} \right)_{\min} = \sqrt{\frac{\text{Var}(\Omega_{n-Am})}{(\Omega_{n-Am})^2} + \frac{\text{Var}(\Omega_{n-pp})}{(\Omega_{n-pp})^2} - 2 \frac{\text{Cov}(\Omega_{n-pp}; \Omega_{n-Am})}{\Omega_{n-pp} \cdot \Omega_{n-Am}}} \quad (3.54)$$

$$\left(\frac{\sigma_{\frac{\Omega_{n-Am}}{\Omega_{n-pp}}}}{\frac{\Omega_{n-Am}}{\Omega_{n-pp}}} \right)_{\max} = \sqrt{\frac{\text{Var}(\Omega_{n-Am})}{(\Omega_{n-Am})^2} + \frac{\text{Var}(\Omega_{n-pp})}{(\Omega_{n-pp})^2}} \quad (3.55)$$

cible ^{243}Am n°1				
	$\frac{\sigma_{\Omega_{n-Am}}}{\Omega_{n-Am}}$	$\frac{\sigma_{\Omega_{n-pp}}}{\Omega_{n-pp}}$	$\frac{\text{Cov}(\Omega_{n-pp}; \Omega_{n-Am})}{\Omega_{n-pp} \cdot \Omega_{n-Am}}$	$\frac{\sigma_{\frac{\Omega_{n-Am}}{\Omega_{n-pp}}}}{\frac{\Omega_{n-Am}}{\Omega_{n-pp}}}$
	%	%	(%) ²	(%)
Geel $T(p, n)^3\text{He}$	3,0	1,3	[0 ; 3,9]	[1,70 ; 3,27]
Geel $D(d, n)^3\text{He}$	2,0	1,3	[0 ; 2,6]	[0,70 ; 2,39]
AIFIRA $D(d, n)^3\text{He}$	2,5	1,4	[0 ; 3,5]	[1,10 ; 2,87]
cible ^{243}Am n°2				
Geel $T(p, n)^3\text{He}$	3,0	1,3	[0 ; 3,9]	[1,70 ; 3,27]
Geel $D(d, n)^3\text{He}$	2,0	1,3	[0 ; 2,6]	[0,70 ; 2,39]
AIFIRA $D(d, n)^3\text{He}$	2,5	1,4	[0 ; 3,5]	[1,10 ; 2,87]

TAB. 3.14 – Tableau des variances-covariances relatif aux angles solides Ω_{n-Am} et Ω_{n-pp} pour les différentes séries de mesures. L'erreur sur le rapport des angles solides est donnée sous forme d'intervalle en tenant compte ou non du terme de covariance des angles solides Ω_{n-Am} et Ω_{n-pp} .

Le tableau (tab.3.15) fournit l'ensemble des résultats obtenus pour les deux cibles d' ^{243}Am . Les erreurs sur les mesures de section efficace de fission ($\sigma_{(n,f)}^{l=1;2}$) (eq.3.26) sont données dans un intervalle associé à celui des angles solides.

⁶Les erreurs dans la définition des angles solides sont essentiellement liées aux incertitudes géométriques de la source de neutrons. Ces erreurs communes impliquent une corrélation positive entre les deux angles solides.

	En (MeV)	σ_{E_n} (MeV)	$\sigma_{(n,f)}^1$ (b)	$\sigma_{(n,f)}^2$ (b)	$\frac{\sigma_{\sigma_{(n,f)}^1}}{\sigma_{(n,f)}^1}$ (%)	$\frac{\sigma_{\sigma_{(n,f)}^2}}{\sigma_{(n,f)}^2}$ (%)	$\text{corr}(\sigma_{(n,f)}^1; \sigma_{(n,f)}^2)$ (sans unité)
Série n°1	1,841	0,100	1,49	1,53	[3,10 ; 4,17]	[3,47 ; 4,45]	0,25
	2,361	0,090	1,57	1,60	[3,15 ; 4,21]	[3,52 ; 4,49]	0,26
Geel	2,876	0,085	1,60	1,60	[3,17 ; 4,23]	[3,54 ; 4,51]	0,23
$T(p, n)^3\text{He}$	2,876	0,085	1,63	1,61	[2,98 ; 4,09]	[3,36 ; 4,37]	0,25
	3,387	0,076	1,56	1,55	[3,01 ; 4,11]	[3,39 ; 4,39]	0,25
Série n°2	5,122	0,074	1,48	1,52	[2,65 ; 3,50]	[3,07 ; 3,83]	0,33
	5,721	0,059	1,55	1,56	[2,70 ; 3,53]	[3,11 ; 3,86]	0,32
Geel	6,824	0,045	2,19	-	[2,96 ; 3,74]	-	-
$D(d, n)^3\text{He}$	7,350	0,042	2,29	2,29	[2,83 ; 3,64]	[3,23 ; 3,95]	0,32
Série n°3	5,997	0,050	-	1,64	-	[3,47 ; 4,36]	-
	6,213	0,042	-	1,82	-	[3,46 ; 4,36]	-
AIFIRA	4,768	0,074	-	1,54	-	[3,25 ; 4,19]	-
$D(d, n)^3\text{He}$	4,070	0,117	-	1,60	-	[3,58 ; 4,45]	-
	3,592	0,198	-	1,58	-	[3,74 ; 4,58]	-

TAB. 3.15 – Mesures, en fonction de l'énergie des neutrons, de la section efficace de fission pour chacune des cibles (colonnes 4 & 5), avec leur erreur relative (colonnes 6 & 7) et la corrélation des erreurs entre les deux mesures (colonne 8). Les résultats sont présentés par séries de mesures. Les erreurs relatives des mesures de la section efficace de fission sont données sous forme d'intervalles (en fonction de la covariance des angles solides Ω_{n-Am} et Ω_{n-pp}).

Pour k mesures indépendantes x_l d'écart type σ_l , la valeur moyenne $\langle x \rangle$ et son erreur associée $\sigma_{\langle x \rangle}$ sont données par les relations :

$$\langle x \rangle = \sum_l^k \frac{x_l}{\sigma_l^2} / \sum_l^k \frac{1}{(\sigma_l)^2} \quad (3.56)$$

$$\sigma_{\langle x \rangle}^2 = 1 / \sum_l^k \frac{1}{(\sigma_l)^2} \quad (3.57)$$

Dans notre cas, notre dispositif nous permet de mesurer deux taux de fission pour une seule mesure du flux de neutrons. Il existe donc une corrélation (due au flux de neutrons) entre ces deux mesures de section efficace qui rend les expressions précédentes incorrectes (eq.3.56 & 3.57). En utilisant les notations simplifiées F_l pour la l^{eme} mesure du taux de fission ($l = 1; 2$) et ϕ_n pour la mesure du flux de neutrons, on a :

$$\sigma_{(n,f)}^l = \frac{F_l}{\phi_n} \cdot \frac{\Omega_n}{\Omega_l} \quad (3.58)$$

où

– $\sigma_{(n,f)}^l$ section efficace de fission mesurée avec la l^{ieme} cible ($l=1; 2$);

- F_l et ϕ_n regroupent, respectivement, l'ensemble des paramètres (précédemment énumérés) propres au taux de fission et au flux de neutrons ;
- Ω_l est l'angle solide de sous-tendu par la i^{eme} cible d' ^{243}Am , position à laquelle est mesuré le taux de fission F_l ;
- Ω_n est l'angle solide de sous-tendu par le polypropylène, position à laquelle est mesuré le flux de neutrons ϕ_n ;

La corrélation d'erreurs entre les deux mesures, à une énergie de neutrons E_n donnée, est donnée par la relation suivante :

$$\text{corr}(\sigma_{(n,f)}^1; \sigma_{(n,f)}^2) = \frac{\text{cov}(\sigma_{(n,f)}^1; \sigma_{(n,f)}^2)}{\sigma_{\sigma_{(n,f)}^1} \sigma_{\sigma_{(n,f)}^2}} = \frac{(\sigma_{\phi_n/\Omega_n})^2}{\sigma_{\sigma_{(n,f)}^1} \sigma_{\sigma_{(n,f)}^2}} \quad (3.59)$$

où

- $\sigma_{\sigma_{(n,f)}^l}$ est l'écart type associé à la mesure de section efficace de fission $\sigma_{(n,f)}^l$, ($l = 1; 2$) ;
- $\text{corr}(\sigma_{(n,f)}^1; \sigma_{(n,f)}^2)$ est la corrélation d'erreurs entre les deux mesures $\sigma_{(n,f)}^1$ et $\sigma_{(n,f)}^2$;
- $\text{cov}(\sigma_{(n,f)}^1; \sigma_{(n,f)}^2)$ est la covariance entre les deux mesures de section efficace ;
- σ_{ϕ_n/Ω_n} est l'écart type du flux de neutrons normalisé (ϕ_n/Ω_n).

La dernière colonne du tableau (tab.3.15) présente les corrélations d'erreurs entre les mesures de chaque cible en fonction de l'énergie des neutrons. Lorsqu'il existe deux mesures, on observe que celles-ci sont corrélées à hauteur de $\sim 30\%$. L'erreur sur le flux de neutrons n'est donc pas négligeable. Il est donc nécessaire de prendre en compte ces corrélations dans les calculs des variances-covariances.

Dès lors, la valeur moyenne de la section efficace de fission $\langle \sigma_{(n,f)} \rangle$ est déduite des relations suivantes :

$$\langle \sigma_{(n,f)} \rangle = \frac{\langle F/\Omega \rangle}{\phi_n/\Omega_n} \quad (3.60)$$

$$\langle F/\Omega \rangle = \sum_{l=1}^m \frac{F_l/\Omega_l}{(\sigma_{(F_l/\Omega_l)})^2} / \sum_{l=1}^m \frac{1}{(\sigma_{(F_l/\Omega_l)})^2} \quad (3.61)$$

$$\langle \sigma_{(n,f)} \rangle = \sum_{l=1}^m \frac{\sigma_{(n,f)}^l}{(\sigma_{(F_l/\Omega_l)})^2} / \sum_{l=1}^m \frac{1}{(\sigma_{(F_l/\Omega_l)})^2} \quad (3.62)$$

$$\text{avec} \quad \left(\frac{\sigma_{(F_l/\Omega_l)}}{F_l/\Omega_l} \right)^2 = \left(\frac{\sigma_{F_l}}{F_l} \right)^2 + \left(\frac{\sigma_{\Omega_l}}{\Omega_l} \right)^2 \quad (3.63)$$

où

- la quantité $\langle F/\Omega \rangle$ est la moyenne des taux de fission normalisés (F_l/Ω_l)

- σ_{F_l} est l'écart type associé à F_l ;
- σ_{Ω_l} est l'écart type associé à Ω_l ;

L'écart type de la section efficace de fission moyenne s'obtient en différentiant l'équation (eq.3.60). Dans le cas général où les erreurs des angles solides sont corrélées et pour des erreurs équivalentes sur les taux de fission normalisés ($Var(F_l/\Omega_l)$), on montre que l'erreur associée à la section efficace moyenne s'écrit (cf. Annexe §.5.2.1, eq.5.22) :

$$\begin{aligned}
 & si, \quad \forall l; l' \in [1; m], \\
 & F_l/\Omega_l \approx F_{l'}/\Omega_{l'} \quad et \quad Var(F_l/\Omega_l) \approx Var(F_{l'}/\Omega_{l'}) \\
 \\
 & alors \quad \left(\frac{\sigma_{\langle \sigma_{(n,f)} \rangle}}{\langle \sigma_{(n,f)} \rangle} \right)^2 = \frac{Var(\langle \sigma_{(n,f)} \rangle)}{\langle \sigma_{(n,f)} \rangle^2} \\
 & \approx \frac{Var(\langle F/\Omega \rangle)}{\langle F/\Omega \rangle^2} + \frac{Var(\phi_n)}{\phi_n^2} + \frac{Var(\Omega_n)}{\Omega_n^2} \\
 & \quad - \frac{2}{m} \cdot \sum_{i=l}^m \frac{Cov(\Omega_n; \Omega_l)}{\Omega_n \cdot \Omega_l} \tag{3.64}
 \end{aligned}$$

Dans l'expression (eq.3.64), on remarque que l'erreur sur la section efficace moyenne est la somme des variances des différents termes de la section efficace moyenne (eq.3.60) à laquelle s'ajoute la moyenne des covariances des angles solides sous-tendus par les cibles d'américium ($\Omega_{l=1;m}$) et le polypropylène (Ω_n). Le tableau (tab.3.16) présente le bilan de cette analyse obtenu à partir de la moyenne des sections efficaces de fission mesurées (cibles Am-1 et Am-2). La dernière colonne de ce tableau donne l'erreur relative maximale associée à cette valeur moyenne (pas de corrélations d'erreurs sur les angles solides).

	E_n (MeV)	σ_{E_n} (MeV)	$< \sigma_{(n,f)} >$ (b)	$\left(\frac{\sigma(<\sigma_{(n,f)}>)}{<\sigma_{(n,f)}>} \right)_{max}$ (%)
Série n°1	1,841	0,100	1,506	3,35
	2,361	0,090	1,583	3,37
Geel	2,876	0,085	1,602	3,30
$T(p,n)^3\text{He}$	2,876	0,085	1,617	3,31
	3,387	0,076	1,551	3,32
Série n°2	5,122	0,074	1,498	2,89
	5,721	0,059	1,554	2,89
Geel	6,824	0,045	2,192	3,74
$D(d,n)^3\text{He}$	7,350	0,042	2,289	2,92
Série n°3	5,997	0,050	1,636	4,36
	6,213	0,042	1,823	4,36
AIFIRA	4,768	0,074	1,537	4,19
$D(d,n)^3\text{He}$	4,070	0,117	1,600	4,45
	3,592	0,198	1,585	4,58

TAB. 3.16 – Mesures réalisées de la section efficace de la réaction $^{243}\text{Am}(n, f)$ en fonction de l'énergie des neutrons. Ces résultats sont présentés par séries (sites de mesures et méthodes de production des neutrons).

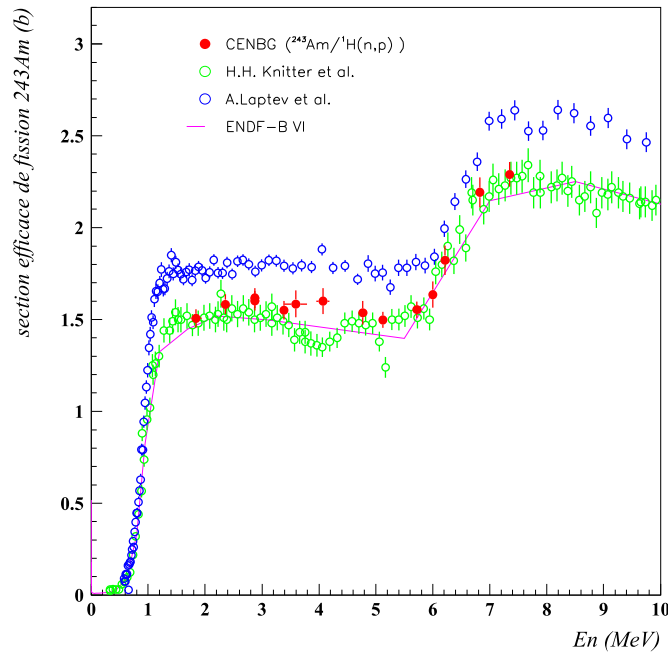


FIG. 3.17 – Section efficace de fission de $l^{243}\text{Am}$: nos mesures sont comparées à celles de H.H.Knitter et al., A.Laptev et al. et l'évaluation de la bibliothèque ENDF.

Les résultats de l'analyse sont en bon accord avec les évaluations existantes et les données de Knitter et al. (fig.3.17). Au final, quatorze points en énergie décrivent le plateau de première chance de fission et la montée de la deuxième chance. Par ailleurs notre objectif sur la précision des mesures est atteint puisque l'erreur totale, statistique et systématique, est de l'ordre de 3% pour les mesures effectuées à Geel (grande statistique accumulée sur deux échantillons d'américium). Les points obtenus à AIFIRA sont entachés d'une erreur statistique plus grande en raison de l'analyse possible d'une seule cible et d'une fluence en neutrons dix fois plus faible. Les données de A.Laptev et al. présentent un écart systématique avec les évaluations existantes et nos mesures (fig.3.17). Ces données ont été normalisées à nos résultats en utilisant la méthode des moindres carrés : on obtient un écart systématique de 12,8% ($\chi^2 = 0.98$). La figure (fig.3.18) présente les données de A.Laptev et al. renormalisées en comparaison avec celles de H.H.Knitter, les nôtres et les évaluations des bibliothèques ENDF et JENDL. On remarque alors un bon accord général entre les mesures sur la gamme d'énergie de neutrons comprise entre 0,1 et 10 MeV. De plus, entre 3 et 5 MeV, nos mesures prévoient un plateau de première chance constant, comme semblent l'indiquer les données de A.Laptev renormalisées, contrairement aux mesures de H.H Knitter et al..

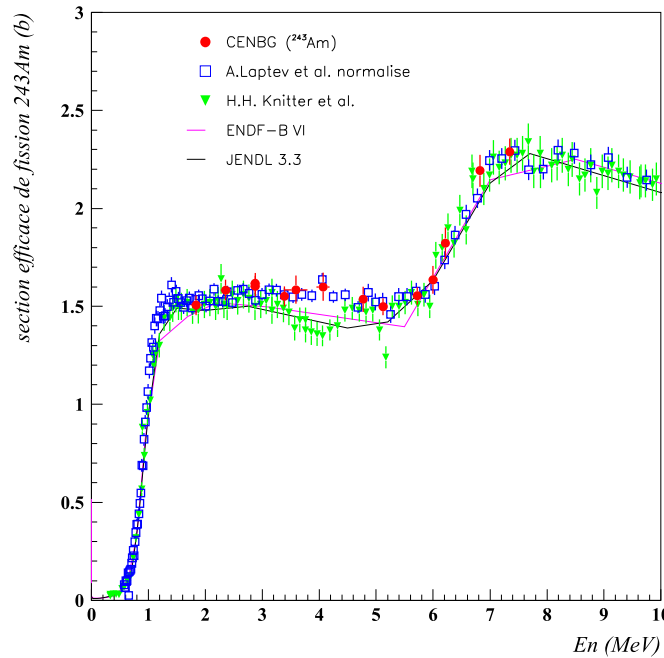


FIG. 3.18 – La figure compare les données renormalisées de A.Laptev et al. à nos mesures : l'écart systématique déterminé par la méthode des moindres carrés est de 12,8% ($\chi^2 = 0.98$).

3.5.2 Covariances des mesures de section efficace de fission

Dans le paragraphe précédent, nous avons montré que les mesures de section efficace de fission de chacune des cibles ne sont pas indépendantes. Il est donc nécessaire de prendre en compte les corrélations des mesures, liées au flux de neutrons et aux corrélations des angles solides, afin d'évaluer la matrice des variances-covariances de nos mesures. On démontre alors que la corrélation de deux mesures moyennes (moyenne des mesures $l=1;m$) de la section efficace de fission est donnée par les relations suivantes (Annexe §.5.3) :

$$\begin{aligned} si \quad \forall i &\in [1;n], \\ \forall l, l' &\in [1;m], \\ \left(F_l/\Omega_l\right)_i &\approx \left(F_{l'}/\Omega_{l'}\right)_i \quad et \quad \left(Var(F_l/\Omega_l)\right)_i \approx \left(Var(F_{l'}/\Omega_{l'})\right)_i \end{aligned} \quad (3.65)$$

$$(3.66)$$

alors, pour deux mesures d'une même série (Annexe §.5.3, eq.5.50) :

$$\begin{aligned} \frac{Cov(<\sigma>_i; <\sigma>_j)}{<\sigma>_i \cdot <\sigma>_j} &\approx \frac{Var(\Omega_n)}{(\Omega_n)^2} + \frac{Var(\phi)_{syst}}{\phi_i \cdot \phi_j} + \left(\frac{Var(<F/\Omega>_{non-corr})}{<F/\Omega>^2} \right)_{syst} \\ &- \frac{2}{m} \cdot \sum_{l=1}^m \frac{Cov(\Omega_n; \Omega_l)}{\Omega_n \cdot \Omega_l} \\ &+ 2 \cdot f_c(Cov(\Omega_l; \Omega_{l'}); \forall l \neq l' \in [1;m]) \end{aligned}$$

où

- n est le nombre de mesures de section efficace de fission mesurée aux énergies $E_{i=1,n}$ et m le nombre de mesures du taux de fission $F_{l=1,m}$ à une énergie donnée ;
- l'indicatif "syst" signifie que seules les variances des paramètres communs (donc systématiques) aux deux mesures sont prises en compte ;
- $\left(\frac{Var(<F/\Omega>_{non-corr})}{<F/\Omega>^2} \right)_{syst}$ est la variance systématique du taux de fission normalisé moyen lorsque les paramètres sont indépendants ;
- f_c est la fonction de corrélations des angles solides des cibles d' ^{243}Am tenant compte des termes covariances de ces angles solides (cf. Annexe §.5.2.1).

* mesures avec une seule cible :

$$\begin{aligned} \frac{Cov(<\sigma>_i; <\sigma>_j)}{<\sigma>_i \cdot <\sigma>_j} \approx & \frac{Var(\Omega_n)}{(\Omega_n)^2} + \frac{Var(\phi)_{syst}}{\phi_i \cdot \phi_j} + \left(\frac{Var(<F/\Omega>_{non-corr})}{<F/\Omega>^2} \right)_{syst} \\ & - 2 \cdot \frac{Cov(\Omega_n; \Omega_1)}{\Omega_n \cdot \Omega_1} \end{aligned} \quad (3.67)$$

* mesures avec deux cibles :

$$\begin{aligned} \frac{Cov(<\sigma>_i; <\sigma>_j)}{<\sigma>_i \cdot <\sigma>_j} \approx & \frac{Var(\Omega_n)}{(\Omega_n)^2} + \frac{Var(\phi)_{syst}}{\phi_i \cdot \phi_j} + \left(\frac{Var(<F/\Omega>_{non-corr})}{<F/\Omega>^2} \right)_{syst} \\ & - \frac{Cov(\Omega_n; \Omega_1)}{\Omega_n \cdot \Omega_1} - \frac{Cov(\Omega_n; \Omega_2)}{\Omega_n \cdot \Omega_2} + 2 \cdot f_c(Cov(\Omega_1; \Omega_2)) \end{aligned} \quad (3.68)$$

Pour deux mesures appartenant à deux séries différentes, la covariance de deux mesures est la somme des variances systématiques du flux de neutrons et du taux de fission. Dans ce cas-ci, on ne prend pas en compte les termes liés aux angles solides qui diffèrent d'une mesure à l'autre. On montre alors que la covariance de deux mesures moyennes est donnée par la relation suivante (cf Annexe §.5.3, eq.5.53)

$$\frac{Cov(<\sigma>_i; <\sigma>_j)}{<\sigma>_i \cdot <\sigma>_j} \approx \frac{Var(\phi)_{syst}}{\phi_i \cdot \phi_j} + \frac{Var(<F>)_{syst}}{<F>^2} \quad (3.69)$$

Les équations précédentes indiquent que les termes de covariances des paramètres interviennent dans la covariance de deux mesures d'une même série. Ces termes font varier la variance et la covariance des mesures. Nous allons étudier deux cas limites correspondant d'abord à des corrélations de paramètres nulles puis maximales :

- Nous avons vu que les covariances des angles solides diminuent les erreurs de la section efficace moyenne (eq.3.64). Dans un premier temps nous allons nous placer dans le cas où les corrélations des paramètres sont nulles correspondant à des erreurs maximales de la section efficace de fission. La matrice de corrélation (fig.3.19) indique un lien systématique fort ($\sim 70 - 99\%$) au sein d'une même série de données et une corrélation inférieure à 50% entre deux séries : ceci s'explique par l'indépendance des erreurs sur les sources de neutrons entre deux séries. De plus ; on observe que l'erreur intrinsèque de la méthode (n,p) ne dépasse pas 1,5%. Ainsi, cette mesure confirme l'évaluation existante avec trois groupes de résultats semi-indépendants (fig.3.17).

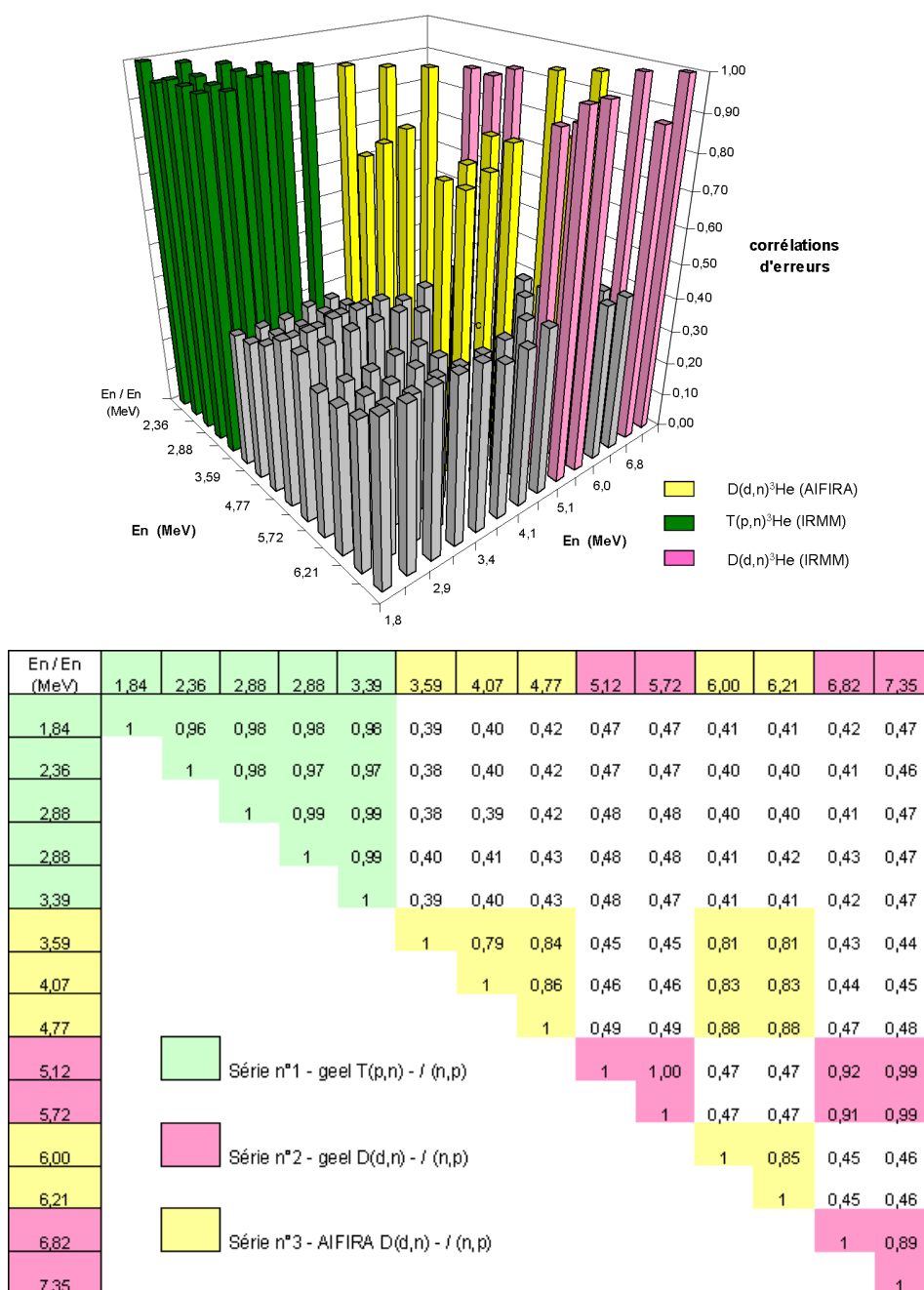


FIG. 3.19 – Matrice de corrélations d'erreurs de la mesure de section efficace de fission de $l^{243}\text{Am}$ en référence à la diffusion (n,p) pour des corrélations nulles des angles solides, correspondant aux maxima des écarts types de la section efficace de fission.

- Dans un second temps, il est possible de faire varier la corrélation des paramètres afin d'évaluer l'importance de ces termes sur les barres d'erreurs finales et l'évolution de la matrice de covariance. En se rappelant que la matrice de corrélation est bornée entre -1 et 1, on constate alors qu'il existe des valeurs limites de corrélations des paramètres (angles solides) : au-delà de ces valeurs, les éléments de la matrice de variances-covariances n'ont plus de sens physique. Ainsi on définit les coefficients de corrélation maximum de la façon suivante :

- Pour les mesures d'une même série de la section efficace de fission moyenne (deux cibles), il existe un coefficient $\langle \text{corr} \rangle_{\text{max}}$ défini par la relation :

$$\begin{aligned} \frac{\text{Cov}(\langle \sigma \rangle_i; \langle \sigma \rangle_j)}{\langle \sigma \rangle_i \cdot \langle \sigma \rangle_j} &\approx \frac{\text{Var}(\Omega_n)}{(\Omega_n)^2} + \frac{\text{Var}(\phi)_{\text{syst}}}{\phi_i \cdot \phi_j} \\ &+ \left(\frac{\text{Var}(\langle F/\Omega \rangle)_{\text{non-corr}}}{\langle F/\Omega \rangle^2} \right)_{\text{syst}} \\ &+ \langle \text{corr} \rangle_{\text{max}} \left[- \frac{\text{Cov}(\Omega_n; \Omega_1)}{\Omega_n \cdot \Omega_1} - \frac{\text{Cov}(\Omega_n; \Omega_2)}{\Omega_n \cdot \Omega_2} + 2 \cdot f_c(\text{Cov}(\Omega_1; \Omega_2)) \right] \end{aligned} \quad (3.70)$$

tel qu'il existe deux énergies ($E_i; E_j$) pour lesquelles :

$$\left| \text{Corr}(\langle \sigma \rangle_i; \langle \sigma \rangle_j) \right| = \left| \frac{\text{Cov}(\langle \sigma \rangle_i; \langle \sigma \rangle_j)}{\sigma_{\langle \sigma \rangle_i} \cdot \sigma_{\langle \sigma \rangle_j}} \right| = 1 \quad (3.71)$$

- Pour les mesures d'une même série de la section efficace de fission de la cible n°2, correspondant à l'ensemble des mesures réalisées à Geel (IRMM-VdG) et à Bordeaux (CENBG-AIFIRA), il existe un coefficient $\text{Corr}(\Omega_n; \Omega_2)_{\text{max}}$ défini par la relation :

$$\begin{aligned} \frac{\text{Cov}(\sigma_i; \sigma_j)}{\sigma_i \cdot \sigma_j} \Big|_{\text{Am-2}} &\approx \frac{\text{Var}(\Omega_n)}{(\Omega_n)^2} + \frac{\text{Var}(\phi)_{\text{syst}}}{\phi_i \cdot \phi_j} + \left(\frac{\text{Var}(F_2/\Omega_2)}{(F_2/\Omega_2)^2} \right)_{\text{syst}} \\ &- 2 \cdot \text{Corr}(\Omega_n; \Omega_2)_{\text{max}} \cdot \frac{\sigma_{\Omega_n} \cdot \sigma_{\Omega_2}}{\Omega_n \cdot \Omega_2} \end{aligned} \quad (3.72)$$

tel qu'il existe deux énergies ($E_i; E_j$) pour lesquelles :

$$\left| \text{Corr}(\sigma_i; \sigma_j) \right|_{\text{Am-2}} = 1 \quad (3.73)$$

On obtient $\langle \text{Corr} \rangle_{\text{max}} = 0,61$ et $\text{Corr}(\Omega_n; \Omega_2)_{\text{max}} = 1.0$. La matrice de corrélation est présentée ci-dessous pour ces valeurs maximales de corrélations des angles solides.

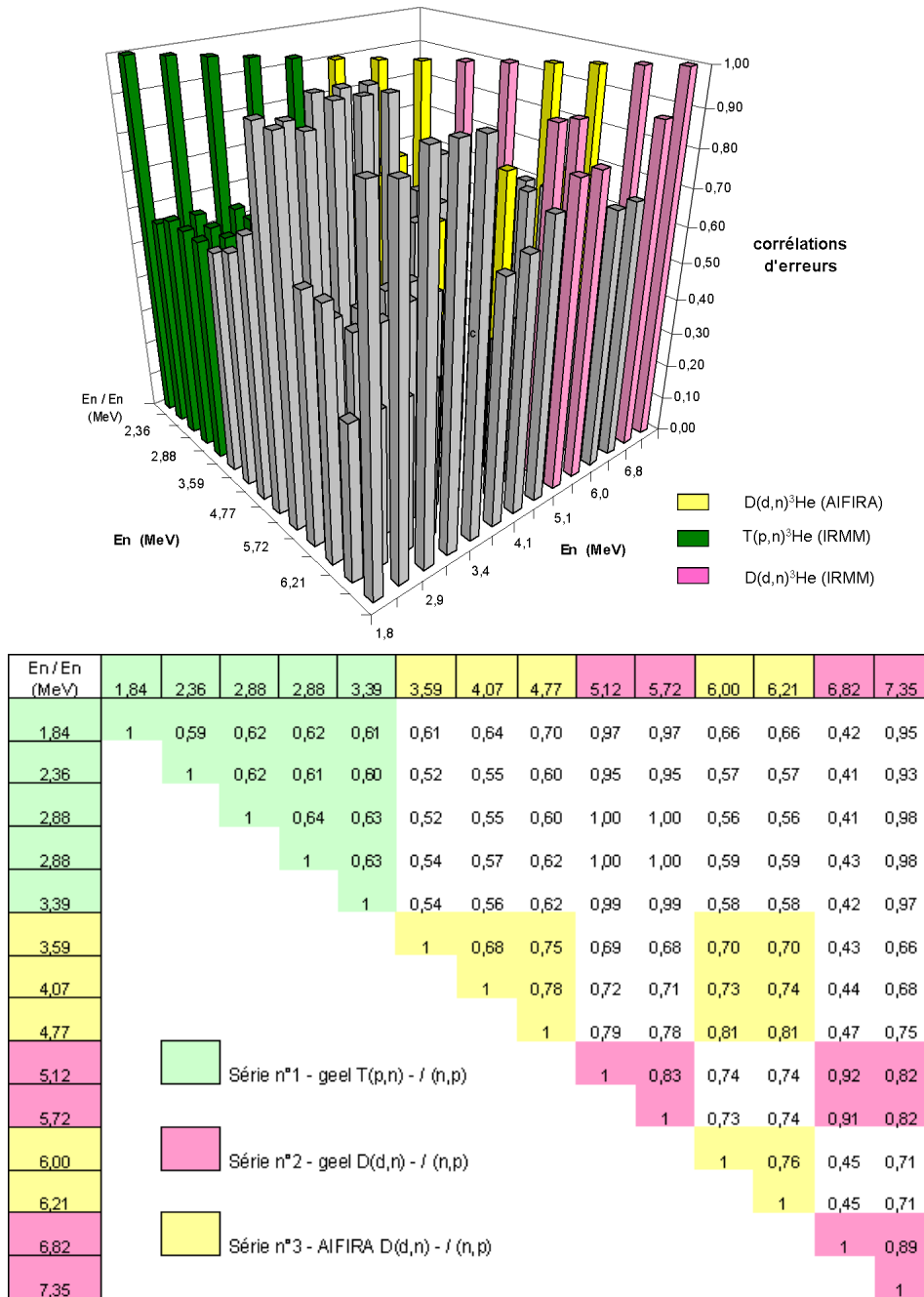


FIG. 3.20 – Matrice de corrélations d'erreurs de la mesure de section efficace de fission de $l^{243}\text{Am}$ en référence à la diffusion (n,p) pour des corrélations maximales des angles solides, correspondant aux minima des écarts types de la section efficace de fission.

Les deux cas limites présentés ci-dessus aboutissent à la conclusion suivante : l'ensemble des corrélations d'erreurs des 14 mesures fixe la limite des corrélations des paramètres pour le jeu des variances choisies. En d'autres termes, les bornes de la matrice de corrélations des mesures de section efficace de fission fixent en partie la corrélation maximale des angles solides (pour l'ensemble des paramètres $\{(a_k, \text{Var}(a_k))\}$).

Il est alors intéressant de déterminer le nombre de valeurs indépendantes réalisées dans ces trois séries de mesures. Cette information est donnée en diagonalisant la matrice de corrélations des erreurs. Dans notre cas, les deux matrices ont des déterminants nuls ($\det(\text{Corr}) \sim 10^{-12}$). La méthode adoptée pour déterminer le nombre de degrés de liberté du système passe par une décomposition en valeurs singulières des matrices de corrélations suivant la transformation :

$$\text{Corr} = U D_s V^* \quad (3.74)$$

où

- D_s est la matrice diagonale associée à Corr dont les éléments diagonaux sont les valeurs singulières $s_{i=1;n}$, avec n le nombre de mesures ;
- U est la matrice des vecteurs singuliers à gauche u_i associés aux valeurs singulières s_i ;
- V est la matrice des vecteurs singuliers à droite v_i associés aux valeurs singulières s_i (V^* est la matrice adjointe de V).

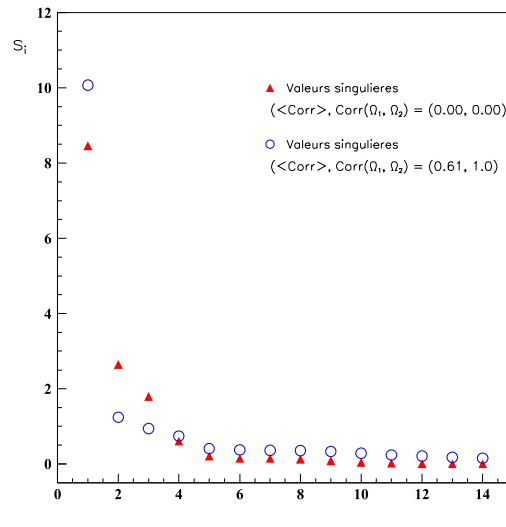


FIG. 3.21 – Valeurs singulières des deux matrices de corrélations d'erreurs des mesures de sections efficaces de fission de $l^{243}\text{Am}$.

Les valeurs singulières des deux matrices limites sont présentées figure (fig.3.21) (calcul avec le logiciel Matlab). Ces valeurs définissent les axes majeurs de la matrice de corrélations d'erreurs dans le sous-espace propre à ces mesures. On remarque que les spectres des valeurs singulières des deux matrices sont similaires ; cela se traduit par le fait que les informations contenues par les deux matrices sont les mêmes. Le tableau (tab.3.17) présente les valeurs singulières des matrices

$(\langle \text{corr} \rangle; \text{corr}(\Omega_n; \Omega_2))$						
(0,00 ; 0,00)				(0,61 ; 1,0)		
i	S_i sans unité	Poids Stat. %	Poids cumulé %	S_i sans unité	Poids Stat. %	Poids cumulé %
1	8.46	59,0	59,0	10,07	63,3	63,3
2	2.65	18,5	77,5	1,24	7,8	71,2
3	1.79	12,5	90,0	0,93	5,9	77,1
4	0.61	4,3	94,3	0,73	4,6	81,7
5	0.21	1,5	95,8	0,40	2,6	84,3
6	0.15	1,0	96,8	0,37	2,4	86,7
7	0.15	1,0	97,9	0,36	2,3	89,0
8	0.13	0,9	98,8	0,35	2,2	91,2
9	0.09	0,6	99,4	0,33	2,1	93,3
10	0.04	0,3	99,7	0,28	1,8	95,1
11	0.02	0,2	99,8	0,24	1,5	96,6
12	0.014	0,1	99,9	0,20	1,3	97,9
13	0.007	0,1	100,0	0,17	1,1	99,0
14	0.003	0,0	100,0	0,15	1,0	100,0

TAB. 3.17 – Valeurs singulières des deux matrices de corrélations des erreurs pour les extréma des covariances des angles solides ($\langle \text{corr} \rangle; \text{corr}(\Omega_n; \Omega_2) = (0,00; 0,00)$ ou $(0,61; 1,0)$).

de corrélations. Dans les deux cas nous avons reporté l'importance de chaque valeur par rapport à l'ensemble du spectre des valeurs singulières. Une dernière colonne indique le poids cumulé des i premières mesures. De ce tableau, il ressort que la répartition de l'information est concentrée sur les premières valeurs. Pour comprendre la signification de chaque valeur singulière, il faut s'intéresser aux vecteurs singuliers associés à la décomposition de la matrice de corrélation. Les vecteurs singuliers droits V_i des deux matrices sont présentés dans le tableau (tab.3.18). Pour les deux matrices ($\langle \text{corr} \rangle; \text{corr}(\Omega_n; \Omega_2) = (0; 0)$ et $(0,61; 1,0)$; cf.fig.3.19 & 3.20) il ressort que :

- la première valeur singulière est associée à l'erreur moyenne de l'ensemble des mesures (coefficient identique pour toutes les mesures). Ce nombre sans dimension représente l'importance de ce vecteur singulier. Pour ces deux matrices, cet "état singulier" représente entre 59% et 63% de l'information apportée ;
- la seconde valeur singulière reflète la différence entre les erreurs des mesures utilisant

la cible de tritium (T) et celles utilisant le deutérium (D) : le poids associé à cet état est de 7 à 18 % suivant les cas ;

- la troisième valeur singulière reflète la différence entre les erreurs des mesures réalisées à Geel utilisant la cible de deutérium et les autres mesures avec une valeur comprise entre 0,9 et 1,8 représentant respectivement 5,9 et 12,5 % de l'information apportée ;
- la quatrième valeur singulière indiquée, représentative des faibles valeurs singulières fournies par le calcul, informe des corrélations entre les mesures indépendamment des séries. L'importance de ces mesures décroît mais elles représentent entre 5 et 15% de l'information apportée.

		$(\langle corr \rangle; corr(\Omega_n; \Omega_2)) = (0,00; 0,00)$				$(\langle corr \rangle; corr(\Omega_n; \Omega_2)) = (0,61; 1,0)$			
valeurs singulières s_i		8.46	2.65	1.79	0.61	9.47	2.59	1.10	0.74
E_n (MeV)		vecteurs singuliers droits $V_{i=1;4}$				vecteurs singuliers droits $V_{i=1;4}$			
T-Geel	1,84	-0.281	0.329	0.100	-0.003	0.270	-0.037	0.272	-0.002
T-Geel	2,36	-0.279	0.331	0.101	0.003	0.255	0.135	0.325	0.067
T-Geel	2,88	-0.282	0.338	0.097	0.016	0.262	0.185	0.378	0.087
T-Geel	2,88	-0.284	0.327	0.101	0.000	0.265	0.142	0.348	0.033
T-Geel	3,39	-0.283	0.331	0.103	0.008	0.262	0.140	0.348	0.044
D-AIFIRA	3,59	-0.248	-0.277	0.223	-0.294	0.236	-0.363	-0.100	-0.067
D-AIFIRA	4,07	-0.253	-0.277	0.225	-0.283	0.245	-0.358	-0.091	-0.033
D-AIFIRA	4,77	-0.266	-0.283	0.223	-0.261	0.265	-0.349	-0.070	-0.018
D-Geel	5,12	-0.270	-0.102	-0.436	0.564	0.318	0.242	-0.335	0.266
D-Geel	5,72	-0.255	-0.077	-0.416	-0.213	0.315	0.273	-0.390	0.124
D-AIFIRA	5.99	-0.270	-0.303	0.210	0.394	0.255	-0.353	-0.026	0.000
D-AIFIRA	6,21	-0.270	-0.302	0.211	0.393	0.255	-0.356	-0.028	0.000
D-Geel	6,82	-0.238	-0.098	-0.413	-0.208	0.202	0.223	-0.091	-0.938
D-Geel	7,35	-0.251	-0.074	-0.418	-0.215	0.308	0.293	-0.367	0.111

TAB. 3.18 – Vecteurs singuliers des principales valeurs singulières pour les deux matrices de corrélations des erreurs. La lettre T ou D indique que les mesures ont été réalisées avec une cible de tritium ou de deutérium.

De cette analyse, nous pouvons en conclure que les deux cas limites de la matrice de corrélations apportent la même information. Ceci s'explique par le fait que la prise en compte des termes de covariances des angles solides ne fait que redistribuer les erreurs systématiques au sein de la matrice de corrélations des mesures. La définition des valeurs singulières associées à leur état (singulier) informe de la distribution de l'information au sein de nos mesures : on peut donc conclure à l'existence de trois séries de mesures indépendantes quelle que soit la répartition des erreurs choisies (cf.fig.3.19 & 3.20). Nos mesures définissent en quatorze points la structure

de la section efficace de fission de ^{243}Am en référence à la diffusion élastique (n,p) dans une gamme d'énergie (E_n) comprise entre 1 et 8 MeV. Au sein d'une série de mesures, les fortes corrélations contraignent l'allure de la section efficace de fission de ^{243}Am ; entre deux séries, des corrélations faibles fixent le poids statistique de nos mesures.

Cette étude nous permet de fixer les limites sur les erreurs des mesures de section efficace. Dans notre cas, les termes de covariances ne font que diminuer les erreurs des mesures. Le tableau (tab.3.19) présente la limite inférieure des erreurs de nos mesures; la limite supérieure présentée initialement (termes de covariances nuls) est ici confirmée.

	E_n (MeV)	σ_{E_n} (MeV)	$\langle \sigma_{(n,f)} \rangle$ (b)	$\left(\frac{\sigma(\langle \sigma_{(n,f)} \rangle)}{\langle \sigma_{(n,f)} \rangle} \right)_{min}$ (%)	$\left(\frac{\sigma(\langle \sigma_{(n,f)} \rangle)}{\langle \sigma_{(n,f)} \rangle} \right)_{max}$ (%)
($\langle corr \rangle$; $corr(\Omega_n; \Omega_2)$)	-	-	-	(0,61 ; 1,0)	(0,00 ; 0,00)
Séire n°1	1,841	0,100	1,506	2,21	3,35
	2,361	0,090	1,583	2,25	3,37
Geel	2,876	0,085	1,602	2,14	3,30
$T(p,n)^3\text{He}$	2,876	0,085	1,617	2,15	3,31
	3,387	0,076	1,551	2,16	3,32
Séire n°2	5,122	0,074	1,498	2,12	2,89
	5,721	0,059	1,554	2,12	2,89
Geel	6,824	0,045	2,192	2,96	3,74
$D(d,n)^3\text{He}$	7,350	0,042	2,289	2,16	2,92
Séire n°3	5,997	0,050	1,636	3,47	4,36
	6,213	0,042	1,823	3,46	4,36
AIFIRA	4,768	0,074	1,537	3,25	4,19
$D(d,n)^3\text{He}$	4,070	0,117	1,600	3,58	4,45
	3,592	0,198	1,585	3,74	4,58

TAB. 3.19 – Mesures, en fonction de l'énergie des neutrons, de la section efficace de fission moyenne. Les résultats sont présentés par séries de mesures; les erreurs sont indiquées pour les deux valeurs limites des corrélations des angles solides.

3.5.3 Mesures en référence aux sections efficaces de fission des $^{235,238}\text{U}$

Les résultats sont répertoriés dans les tableaux suivants (tab.3.20 & 3.21). Les mesures ont été réalisées au niveau du plateau de première chance fission et au seuil de la seconde chance. Les mesures obtenues par des méthodes différentes aux mêmes énergies de neutrons sont en très bon accord (fig.3.22). On peut donc penser que les facteurs systématiques différents pour chacune des méthodes ont été correctement pris en compte dans l'analyse des données.

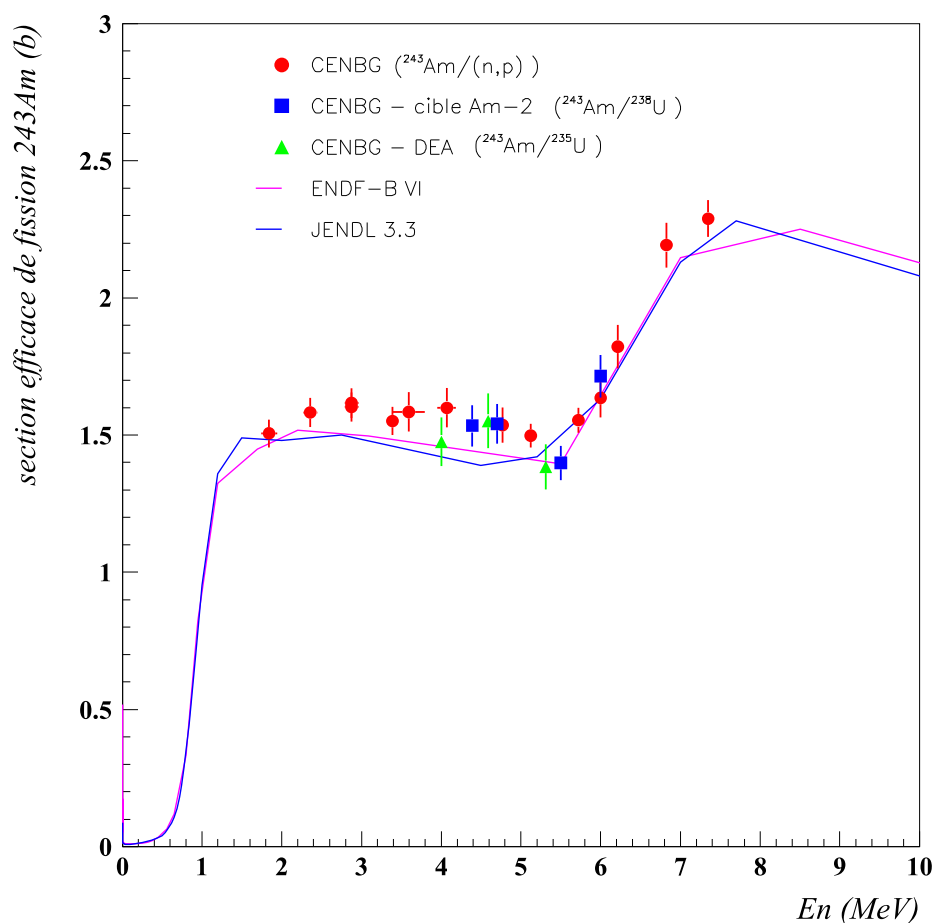


FIG. 3.22 – Résultats sur la section efficace de fission de $l^{243}\text{Am}$ en comparaison aux évaluations des bibliothèques ENDF et JENDL.

	E_n (MeV)	σ_{E_n} (MeV)	$\sigma_{(n,f)}^{243\text{Am}}$ (b)	$\frac{\sigma_{(n,f)}^{stat}(^{243}\text{Am})}{\sigma_{(n,f)}(^{243}\text{Am})}$ (%)	$\frac{\sigma(\sigma_{(n,f)}(^{243}\text{Am}))}{\sigma_{(n,f)}(^{243}\text{Am})}$ (%)
Série n°4 AIFIRA $TiD(d,n)^3He$	4,7	0,05	1,541	2,24	[4,18 ; 4,63]
Série n°5	4,39	0,05	1,534	2,57	[4,36 ; 4,80]
AIFIRA	5,50	0,05	1,399	1,40	[3,80 ; 4,29]
$D(d,n)^3He$	6,00	0,05	1,715	1,73	[3,93 ; 4,41]

TAB. 3.20 – Mesures en fonction de l'énergie des neutrons de la section efficace de fission de $l^{243}\text{Am}$ en référence à la section efficace de fission de $l^{238}\text{U}$. Les erreurs statistiques ($\sigma(\sigma_{(n,f)}^{243\text{Am}})^{stat}$) et les erreurs totales $\sigma(\sigma_{(n,f)}^{243\text{Am}})$ sont indiquées pour chaque mesure. L'erreur $\sigma(\sigma_{(n,f)}^{243\text{Am}})$, donnée sous forme d'intervalle, informe sur l'importance du terme de covariance des angles solides

	E_n (MeV)	σ_{E_n} (MeV)	$\sigma_{(n,f)}(^{243}\text{Am})$ (b)	$\frac{\sigma_{(n,f)}^{stat}(^{243}\text{Am})}{\sigma_{(n,f)}(^{243}\text{Am})}$ (%)	$\frac{\sigma(\sigma_{(n,f)}^{243\text{Am}})}{\sigma_{(n,f)}^{243\text{Am}}}$ (%)
Série n°6	4,00	0,05	1,476	2,28	6,20
AIFIRA	4,59	0,05	1,552	2,51	6,29
$TiD(d,n)^3He$	5,31	0,05	1,384	1,67	6,01

TAB. 3.21 – Mesures en fonction de l'énergie des neutrons de la section efficace de fission de $l^{243}\text{Am}$ en référence à la section efficace de fission de $l^{235}\text{U}$ (ENDF/BVII.0) réalisées sur le Van de Graaf du CENBG [Ke05].

La matrice de corrélation (fig.3.23 & fig.3.24) de l'ensemble des mesures a été déterminée. Les mesures réalisées en référence à la section efficace de fission de $l^{238}\text{U}$ sont faiblement corrélées aux autres mesures puisque seules les erreurs sur la quantité d' ^{243}Am et la géométrie du détecteur de fragments de fission entrent dans le terme de corrélation. En revanche, au sein de cette série, les mesures sont très fortement corrélées en raison de la minimisation des erreurs statistiques sur les taux de fission. De même, les mesures en référence à $l^{235}\text{U}$ sont fortement corrélées entre elles, pour les mêmes raisons que précédemment. Elles sont par contre totalement indépendantes des mesures en référence aux autres standards puisque les cibles, les installations produisant les neutrons et les dispositifs sont différents.

Nous avons donc réalisé vingt mesures en référence à trois réactions standards bien connues dans le domaine des neutrons rapides qui tendent à confirmer les évaluations existantes. De plus, la cohérence de nos mesures indique que les erreurs systématiques semblent avoir été correctement évaluées.

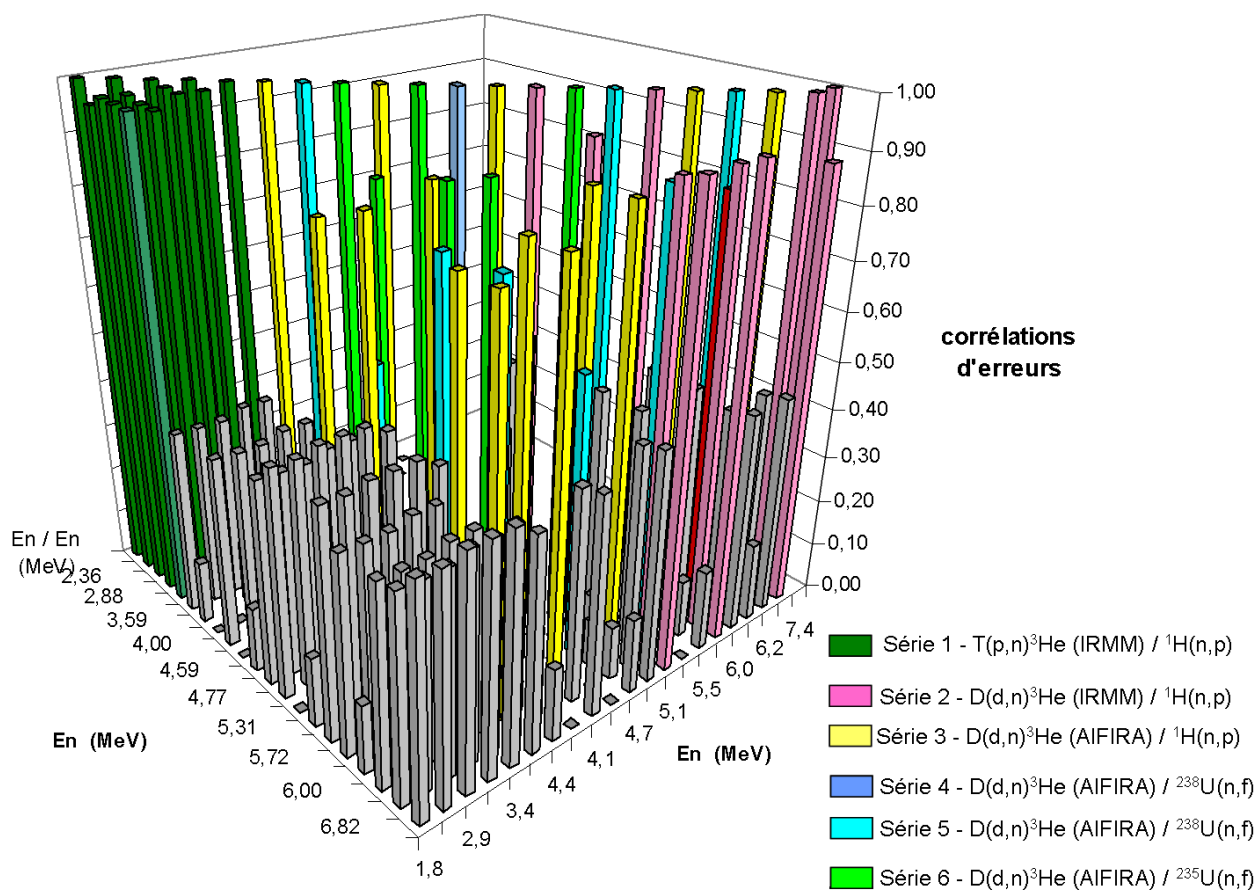


FIG. 3.23 – Matrice de corrélations d'erreurs de l'ensemble des mesures de la section efficace de fission de $l^{243}\text{Am}$ réalisées en référence à la diffusion élastique (n,p) et aux sections efficaces de fission de $l^{238}\text{U}$ et de $l^{235}\text{U}$.

En/En (MeV)	1.84	2.36	2.88	2.88	3.39	3.59	4.39	4.00	4.07	4.59	4.70	4.77	5.12	5.31	5.50	5.72	6.00	6.00	6.21	6.82	7.35
1.84	1	0,96	0,98	0,98	0,98	0,98	0,98	0,98	0,98	0,98	0,98	0,98	0,98	0,98	0,98	0,98	0,98	0,98	0,98	0,98	0,98
2.36		1	0,98	0,97	0,97	0,97	0,97	0,97	0,97	0,97	0,97	0,97	0,97	0,97	0,97	0,97	0,97	0,97	0,97	0,97	0,97
2.88			1	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99
2.88				1	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99
3.39					1	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99
3.59						1	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99
4.39							1	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99
4.00								1	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99
4.07									1	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99
4.59										1	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99
4.70											1	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99
4.77												1	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99
5.12													1	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99
5.31														1	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99
5.50															1	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99
5.72																1	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99
6.00																	1	0,99	0,99	0,99	0,99
6.00																		1	0,99	0,99	0,99
6.21																			1	0,99	0,99
6.82																				1	0,99
7.35																					1

FIG. 3.24 – Matrice de corrélations d'erreurs de l'ensemble des mesures de la section efficace de fission de $l^{243}\text{Am}$ réalisées en référence à la diffusion élastique (n,p) et aux sections efficaces de fission de $l^{238}\text{U}$ et de $l^{235}\text{U}$ (corrélations des angles solides nulles).

3.6 Evaluation de $l^{243}\text{Am}$

Le groupe ACEN du CENBG a développé un programme d'évaluation de section efficace [Pe04] [Gr05]. Dans le domaine des neutrons rapides $[0,1;10]$ MeV, la capture d'un neutron par le noyau de la cible conduit à la formation d'un noyau composé. Dans cette hypothèse, la formation du noyau composé est découplée de sa désexcitation. On peut alors écrire la section efficace dans la voie i ($\sigma_{(n,i)}^{AX}$) suivant la relation :

$$\sigma_{(n,i)}^{AX}(E_n) = \sigma_{cn}^{A+1X}(E_n) \cdot P_i^{A+1X}(E_n) \quad (3.75)$$

où $\sigma_{cn}^{A+1X}(E^*)$ est la section efficace de formation du noyau composé $A+1$ et P_i^{A+1X} la probabilité de désexcitation de ce noyau dans la voie i . Pour des neutrons de cette gamme d'énergie, les différentes voies de désexcitation sont l'émission γ (capture (n, γ)), l'émission d'un neutron (diffusion inélastique (n, n') et la réaction $(n, 2n)$) ou la fission (n, f) . Dans ce programme, le calcul des différentes voies de désexcitation de ce noyau composé est effectué à partir du formalisme de Hauser-Feshbach [Ha52].

3.6.1 Section efficace de formation du noyau composé

La section efficace de formation du noyau composé $A+1$ est calculée à partir d'un modèle optique semimicroscopique développé au CEA/DAM de Bruyères-le-Châtel [Be01]. Il décrit l'interaction d'un neutron avec le noyau cible dans son sous-ensemble à partir du potentiel :

$$V = U + iW \quad (3.76)$$

où la partie imaginaire du potentiel rend compte de l'absorption du neutron par le noyau cible. Le potentiel repose sur une approche microscopique de la collision du neutron avec les nucléons du noyau cible en tenant compte des effets du milieu. Pour les noyaux lourds déformés considérés dans ce travail, la diffusion (élastique) sur l'état fondamental est fortement couplée aux états collectifs de basse énergie de la cible (diffusion inélastique directe). Formellement, cela donne lieu à un système d'équations de Schrodinger couplées dont la résolution est traitée à partir du programme ECIS. Dans notre cas, les états collectifs que nous avons utilisés correspondent à la bande de rotation construite sur le fondamental du noyau cible ^{243}Am . Ce traitement fournit la section efficace totale (σ_T), élastique (σ_e), inélastique directe (σ_{inel}^d) et la section efficace de réaction (σ_R). Pour des énergies de neutrons inférieures à 10 MeV, nous négligerons les réactions de prééquilibre. La section efficace totale de formation du noyau composé (σ_{nc}) va s'écrire :

$$\sigma_{nc}(E_n) = \sigma_R - \sigma_{inel}^d \quad (3.77)$$

Le calcul fournit également les coefficients de transmission $T_\ell^{j=l\pm 1/2}$ où ℓ représente le moment angulaire orbital du neutron incident. Ces coefficients vont nous permettre de calculer pour une

énergie incidente E_n , la section efficace $\sigma_{nc}^{A+1X}(E^*, J, \pi)$ de formation d'un noyau composé de spin et parité J, π . Nous avons repris le formalisme et les expressions de la thèse de M. Petit [Pe02]. On considère un noyau cible de spin et parité (\vec{s}_c, π_c) , un neutron de spin et parité (\vec{s}_n, π_n) de moment orbital $\vec{\ell}$ normal à l'axe du faisceau pris comme axe de quantification ($M_\ell = 0$). Pour un noyau composé de spin et parité (J, π) , de projection M sur l'axe du faisceau, on peut écrire :

$$\begin{aligned} \sigma_{nc}^{A+1X}(E_n, J, M, \pi) = & \frac{\pi \lambda^2}{2(2s_c + 1)} \left(T_o^{\frac{1}{2}}(En) \cdot \delta(\pi_c, \pi) \cdot \delta\left(|s_c - \frac{1}{2}| \leq J \leq |s_c + \frac{1}{2}|\right) \right. \\ & + \sum_{\ell=0} \delta(\pi_c, (-1)^\ell, \pi) \cdot \left((\ell + 1) \cdot T_\ell^{\ell+\frac{1}{2}}(En) \cdot \sum_{m_n m_c} < (\ell + \frac{1}{2}) m_n s_c m_c | JM >^2 \right. \\ & \left. \left. + \ell \cdot T_\ell^{\ell-\frac{1}{2}}(En) \cdot \sum_{m_n m_c} < (\ell - \frac{1}{2}) m_n s_c m_c | JM >^2 \right) \right) \end{aligned} \quad (3.78)$$

où

- les symboles de Kronecker δ assurent la conservation du spin et de la parité ;
- λ est la longueur d'onde réduite ;
- $< (\ell + \frac{1}{2}) m_n s_c m_c | JM >$ est le coefficient de Clebsch-Gordan qui définit le couplage des moments angulaires $\ell + 1/2$ et s_c pour former le moment J.

Il vient en sommant sur $-J < M < J$:

$$\sigma_{nc}^{A+1X}(E_n, J, \pi) = \sum_{M=-J}^{+J} \sigma_{nc}^{A+1X}(E_n, J, M, \pi) \quad (3.79)$$

3.6.2 Probabilité de désexcitation

Dans la gamme d'énergie des neutrons considérée dans ce travail, le noyau composé initial est ^{244}Am dont les voies de désexcitation ouvertes sont la fission, l'émission γ et l'émission d'un neutron. Cette dernière émission conduit au noyau résiduel ^{243}Am . Selon son énergie d'excitation, celui-ci peut fissionner, émettre un γ ou émettre un neutron pour former le noyau final ^{242}Am de la chaîne d'évaporation de neutrons. Celle-ci est arrêtée avant l'ouverture des voies (n,3n) et (n,2nf). La figure (fig.3.25) présente un schéma des différentes voies de désexcitation considérées. On remarquera que la fission des noyaux $^{243,244}\text{Am}$ est traitée dans le cadre d'une double barrière de fission.

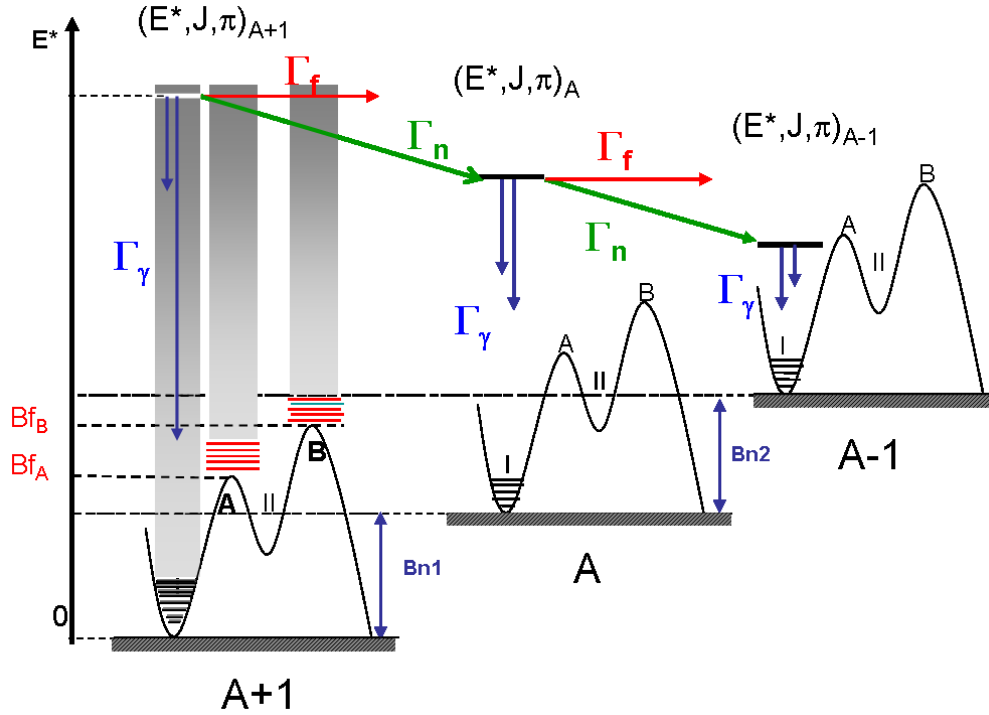


FIG. 3.25 – Schéma des voies de désexcitation traitées par le programme d'évaluation.

Pour un noyau de la chaîne, sa désexcitation s'exprime à partir des largeurs partielles Γ_γ , Γ_n et Γ_f . Le calcul de ces largeurs partielles est exposé dans la thèse de M.Petit et C.Grosjean. Nous en rappellerons ici le principe du calcul.

– **Largeur partielle d'émission d'un neutron : Γ_n**

On suppose que le neutron est émis depuis le premier puits du noyau A+1 (ou A, A-1 ...) et qu'il ne modifie pas l'état de déformation du noyau. La largeur d'émission d'un neutron est obtenue en sommant la contribution des états (continus et discrets) du noyau résiduel quand ils répondent aux règles de conservation du spin et de la parité mises en jeu dans le processus.

– **Largeur partielle d'émission γ : Γ_γ**

De même que pour l'émission neutron, nous supposons que l'émission d'un rayonnement γ ne modifie pas la déformation du noyau composé et que les transitions s'effectuent entre deux états du premier puits du noyau composé (A+1, A ou A-1). Dans notre analyse, seules les transitions dipolaires électriques du type E_1 sont prises en compte. La largeur d'émission Γ_γ est la somme des largeurs correspondant aux différents états finaux (continus et discrets).

– **Largeur partielle de fission** : Γ_f

La fission est traitée dans le cas de la traversée d'une double barrière de fission (A et B). Chaque barrière est modélisée par une parabole décrite par sa hauteur $E_{A,B}$ et sa largeur $\hbar\omega_{A,B}$. Dans ce travail ($En \in [0, 1; 10]MeV$), nous négligerons tout effet de résonance associée à la pénétrabilité de la double barrière de fission ainsi que l'émission γ et *neutron* dans le second puits. Les deux barrières sont considérées comme indépendantes. Dans ces hypothèses, la largeur de fission va s'écrire :

$$\Gamma_f^{A+1} = \left(\frac{\Gamma_A \cdot \Gamma_B}{\Gamma_A + \Gamma_B} \right)_{A+1} \quad (3.80)$$

où Γ_A (ou Γ_B) représente la largeur partielle de fission associée à la traversée de la barrière A (ou B)

Pour des neutrons d'énergie inférieure à 10 MeV, la probabilité de désexcitation du noyau A+1 dans la voie fission P_f^{A+1} (cf.eq.3.75) s'écrit :

$$P_f^{A+1X}(E^*) = \left(\frac{\Gamma_f}{\Gamma_T} \right)_{A+1} + \left(\frac{\Gamma_n}{\Gamma_T} \right)_{A+1} \cdot \left(\frac{\Gamma_i}{\Gamma_T} \right)_A \quad (3.81)$$

$$avec \quad \Gamma_T = \Gamma_n + \Gamma_f + \Gamma_\gamma \quad (3.82)$$

Le premier terme décrit la fission de première chance de la réaction $^{243}Am(n, f)$, le second terme correspond à la fission de seconde chance $^{243}Am(n, nf)$.

3.6.3 Densité de niveaux

La description du noyau composé fait intervenir les densités de niveaux de trois noyaux ($^{244,243,242}Am$). Pour les deux premiers, ces densités de niveaux doivent être calculées à différents états de déformation associés à leur état fondamental et aux déformations correspondant aux sommets de leurs barrières de fission. Notre calcul repose sur l'expression générale suivante :

$$\rho(E^*, J, \pi) = \frac{1}{2} \cdot R(E^*, J, \pi) \rho_{int}(E^*) \quad (3.83)$$

Le facteur 1/2 rend compte de l'équipartition des niveaux de moment angulaire J en fonction de leur parité ($\pi = +/ -$) ; $\rho_{int}(E^*)$ est la densité de niveaux intrinsèque à l'énergie d'excitation E^* ; $R(E^*, J, \pi)$ fait intervenir le moment angulaire J et les effets associés aux symétries du noyau dans le processus de fission.

Dans notre calcul, l'état fondamental est supposé à symétrie axiale. Celui-ci est caractérisé par

son moment angulaire J et sa projection K sur l'axe de symétrie. La densité de niveaux $\rho(E^*, J, \pi)$ peut alors s'écrire sous la forme proposée par S.Bjornholm, A.Bohr et B.R.Mottelson [Bo98] :

$$\rho_{ax}^{GS}(E^*, J, \pi) = \frac{1}{2} \cdot \frac{2J+1}{\sqrt{8\pi} \sigma^{\parallel}(E^* - E_R(J))} \rho_{int}^{GS}(E^* - E_R(J, K)) \quad (3.84)$$

où $E_R(J, K)$ est l'énergie de rotation associée au niveau J et σ^{\parallel} est le paramètre de spin-cutoff pour la distribution des projections du moment angulaire sur l'axe de symétrie du noyau. Pour des énergies d'excitation voisines de 6 MeV, ce paramètre de spin-cutoff est proche de 5 à 6 \hbar . Le facteur d'accroissement de la densité de niveaux intrinsèque est d'environ 30 [Pe02].

*** Passage de la première barrière de fission (E_A) :**

Depuis une quarantaine d'années, on sait que le noyau présente une forme triaxiale au passage de la première barrière de fission. La projection K du moment angulaire J n'est plus une constante du mouvement total. Les rotations collectives ne se limitent plus aux rotations autour d'un axe perpendiculaire à l'axe de symétrie ; la densité de niveaux $\rho(E^*, J)$ peut s'écrire sous la forme :

$$\rho_{n-ax}(E^*, J, \pi) = \frac{1}{2} (2J + 1) \rho_{int}^A(E^* - E_R(J)) \quad (3.85)$$

Cette rupture de symétrie axiale se traduit par une augmentation des densités de niveaux (par rapport à la symétrie axiale) d'un facteur $\sqrt{8\pi} \sigma^{\parallel}(E^*)$. A un MeV au-dessus de la première barrière, le facteur d'accroissement est voisin de quinze.

*** Passage de la seconde barrière de fission (E_B) :**

Le noyau retrouve sa symétrie axiale au passage de la seconde barrière. La symétrie brisée est ici la réflexion par rapport au plan perpendiculaire à l'axe de symétrie ; elle rend compte de l'instabilité de cette seconde barrière vis-à-vis de l'asymétrie de masse (déformation octupolaire). La densité de niveaux s'écrit :

$$\rho(E^*, J, \pi) = 2 \cdot \frac{1}{2} \cdot \frac{2J+1}{\sqrt{8\pi} \sigma^{\parallel}(E^* - E_R(J))} \rho_{int}^B(E^* - E_R(J)) \quad (3.86)$$

où le facteur 2 rend compte de la rupture de symétrie par réflexion.

*** Calcul de la densité de niveaux intrinsèque ρ_{int} :**

Nous utiliserons l'approche phénoménologique d'A.V.Ignatyuk [Ig93]. Elle dérive du modèle de Fermi auquel plusieurs améliorations ont été apportées. Les plus importantes concernent :

- la prise en compte des effets de couche (effets microscopiques) sur le paramètre de densité de niveaux a qui varie fortement au voisinage des couches magiques. Notre calcul de ce paramètre est basé sur l'expression suivante :

$$a(N, Z, E^*) = \tilde{a}(A) \cdot (1 + \Delta S(N, Z) (1 - e^{-\gamma \cdot U})) \quad (3.87)$$

où $\tilde{a}(A)$ est la valeur asymétrique à haute énergie du paramètre a ; $\Delta S(N, Z)$ est la correction de couche dont l'amortissement avec l'énergie d'excitation U est gouvernée par l'expression $(1 - e^{-\gamma \cdot U})$.

- la prise en compte des effets d'appariement à partir d'une expression analytique couplée à un ajustement sur les données expérimentales extraites (en particulier) des mesures dans le domaine des neutrons de résonances.

L'approche d'A.V.Ignatyuk distingue deux régions d'énergie d'excitation selon que le noyau puisse être considéré comme un ensemble de fermions indépendants ou pas. Nous allons rappeler brièvement les idées principales de cette approche. On définit une énergie d'excitation effective :

$$U' = U + \chi \Delta_0 \quad (3.88)$$

où Δ_0 est le terme de correction de pairing ($\chi = 0$ (impair-impair) ; 1 (impair) ; 2 (pair-pair)). C'est un terme ajustable ou fixé à partir de la relation empirique $12/\sqrt{A}$.

L'échelle de cette énergie d'excitation est renormalisée pour tenir compte des effets d'appariement. Cette renormalisation conduit à retrancher à l'énergie d'excitation une énergie de "condensation" :

$$E_{cond} = 0,407 a_c \Delta_0^2 \quad (3.89)$$

La transition de phases entre les deux régimes est définie par une température critique t_c et une énergie critique U_c :

$$U_c = a_c t_c^2 + E_{cond} \quad (3.90)$$

$$t_c = 0,567 \Delta_0 \quad (3.91)$$

Dans les deux cas, la densité de niveaux intrinsèque s'écrit :

$$\rho_{int}(U') = \frac{e^S}{\sqrt{D}} \quad (3.92)$$

Les expressions de l'entropie S et de la quantité D dépendent de la région considérée :

– **Pour $U' \leq U_c$:**

Il vient pour $U' = U_c$,

$$S_c = 2 a_c t_c \quad (3.93)$$

$$D_c = \frac{144}{\pi} \cdot a_c^3 \cdot t_c^5 \quad (3.94)$$

à partir de ces relations, on tire :

$$S = S_c \frac{t_c}{c} (1 - \phi^2) \quad (3.95)$$

$$D = D_c (1 - \phi^2) (1 + \phi^2)^2 \quad (3.96)$$

où ϕ est une variable intermédiaire définie par la relation implicite :

$$\phi = \tanh\left(\frac{t_c}{t} \phi\right) \quad (3.97)$$

Le calcul du paramètre de densité de niveaux a_c est plus délicat car il demande la résolution de l'équation implicite :

$$a_c = \tilde{a} \left(1 + \Delta S \left[\frac{1 - e^{-\gamma a_c t_c^2}}{a_c t_c^2} \right] \right) \quad (3.98)$$

– **Pour $U > U_c$:**

On retrouve les expressions thermodynamiques d'un système de fermions indépendants. L'entropie S , la température t et le paramètre D sont déduits de l'énergie d'excitation effective.

$$U' = a t^2 + E_{cond} \quad (3.99)$$

$$S = 2 a t = 2 \sqrt{a (U' - E_{cond})} \quad (3.100)$$

$$D = \frac{144}{\pi} a_c^3 t_c^5 \quad (3.101)$$

Nous rappelons que le paramètre de densité de niveaux est donné par la relation :

$$a(N, Z, E^*) = \tilde{a}(A) \cdot [1 + \Delta S(N, Z) (1 - e^{-\gamma (U' - E_{cond})})] \quad (3.102)$$

Pour le paramètre de densité de niveaux asymptotique et le facteur d'amortissement γ , nous avons utilisé les expressions préconisées par A.V.Ignatyuk.

$$\tilde{a}(A) = (0,073 A + 0,115 A^{2/3}) MeV^{-1} \quad (3.103)$$

$$\gamma = 0,40 A^{1/3} MeV^{-1} \quad (3.104)$$

3.6.4 Résultats

Le premier volet de l'analyse concerne l'interprétation de la section efficace de fission expérimentale entre 0,1 MeV et 10 MeV ; c'est-à-dire la fission de première chance (n,f) et l'ouverture de la fission de deuxième chance de ^{243}Am . Nos mesures (tab.3.19, 3.21 & 3.20) ont été complétées par les mesures plus anciennes extraites de la base de données expérimentales EXFOR. Un total de 715 points de mesures a été considéré.

La section efficace de fission est calculée à partir des relations (eq.3.75 & 3.81) présentées ci-dessus. Comme nous venons de l'expliquer, plusieurs paramètres interviennent dans le calcul des largeurs partielles et des densités de niveaux. La largeur d'émission γ est normalisée à la valeur mesurée dans le domaine des résonances $< \Gamma_\gamma > = 45\text{meV}$. Dans la voie de la diffusion inélastique, les premiers niveaux clairement identifiés en spin et parité des ^{243}Am (40 niveaux) et ^{244}Am (14 niveaux) ont été pris en compte. Dans la formulation des densités de niveaux, nous avons conservé les valeurs préconisées par A.V.Ignatyuk en ce qui concerne la valeur asymptotique \tilde{a} du paramètre de densité de niveaux et le paramètre γ de l'amortissement des effets de couches avec l'énergie d'excitation.

Pour les noyaux ^{242}Am , ^{243}Am et ^{244}Am , les effets de couches associés aux états fondamentaux sont extraits de la table de masse de P.Möller et J.R.Nix [Mo95]. Les effets de couches aux sommets des barrières de fission sont extraites de la systématique établie par A.S.Iljinov [Il92]. Les paramètres de spin-cutoff ont été calculés à partir des moments d'inertie des noyaux dans leurs états fondamentaux et aux sommets de leur barrière de fission. Pour ces trois noyaux, les moments d'inertie sont calculés pour des déformations quadripolaires β_2 extraites des travaux théoriques de W.M.Howard et P.Möller [Ho80]. Les paramètres libres sont les barrières (hauteurs et largeurs) des noyaux ^{243}Am et ^{244}Am . La section efficace calculée ($\sigma_{(n,f)}^{calc}$) est comparée aux mesures de la section efficace de fission ($\sigma_{(n,f)}^{exp}$). Cette comparaison est réalisée en minimisant l'expression ci-dessous :

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^{n=715} \left(\frac{\sigma_{(n,f)}^{calc} - \sigma_{(n,f),i}^{exp}}{\sigma_{\sigma_{(n,f),i}^{exp}}} \right)^2 \quad (3.105)$$

où $\sigma_{\sigma_{(n,f),i}^{exp}}$ est l'erreur sur les mesures.

La minimisation de cette expression est recherchée en faisant varier les caractéristiques des barrières de fission des ^{243}Am et ^{244}Am . Pour reproduire les résultats expérimentaux, nous avons dû ajuster :

- le terme de correction de pairing Δ_0 ; la variation maximale ne dépasse pas 5% de la valeur empirique $12/\sqrt{A}$;

Correction de pairing Δ_0 (MeV)			
β_2	0,2	0,5	0,8
^{244}Am	$12/\sqrt{A}$	$11,4/\sqrt{A}$	$12,6/\sqrt{A}$
^{243}Am	$11,6/\sqrt{A}$	$11,6/\sqrt{A}$	$11,6/\sqrt{A}$

TAB. 3.22 – Correction de pairing en fonction de la déformation (β_2) pour les noyaux $d^{243}\text{Am}$ et ^{244}Am .

– le terme de correction de couches $\Delta S_{A/B}$ au sommet des deuxièmes barrières des noyaux fissionnant ^{243}Am et ^{244}Am .

Correction de couches $\Delta S_{A/B}$ (MeV)			
β_2	0,2	0,5	0,8
$^{243,244}\text{Am}$	-	2,5	0,0

TAB. 3.23 – Correction de couches $\Delta S_{A/B}$ en fonction de la déformation (β_2) pour les noyaux $d^{243}\text{Am}$ et ^{244}Am .

Le meilleur accord avec les résultats expérimentaux est obtenu pour le jeu de paramètres présenté dans le tableau ci-dessous (tab.3.24). Ces résultats sont comparés à la systématique établie par S.Bjornholm et J.E.Lynn [Bj80] sur un grand nombre d'actinide. Les hauteurs de barrières obtenues dans ce travail sont en bon accord avec cette systématique. La largeur des barrières indiqués par S.Bjornholm sont les largeurs moyennes attendues dans cette région. Elles doivent être ajustées aux données pour chaque noyau ; ceci explique l'écart entre nos résultats et cette systématique.

nos résultats				
Barrières de fission A et B (MeV)				
	E_A	$\hbar\omega_A$	E_B	$\hbar\omega_B$
^{243}Am	5,7	0,6	5,6	0,8
^{244}Am	6,2	0,4	5,7	0,6
S.Bjrnholm et J.E.Lynn				
Barrières de fission A et B (MeV)				
	E_A	$\hbar\omega_A$	E_B	$\hbar\omega_B$
^{243}Am	$5,9 \pm 0,2$	0,65	$5,4 \pm 0,3$	0,45
^{244}Am	$6,3 \pm 0,2$	0,65	$5,4 \pm 0,3$	0,45

TAB. 3.24 – Barrières de fission A et B obtenues par notre calcul pour les noyaux $d^{243}\text{Am}$ et ^{244}Am en comparaison à la systématique établie par S.Bjornholm et J.E.Lynn [Bj80].

La figure (fig.3.26) présente la section efficace de fission calculée et sa comparaison aux résultats expérimentaux.

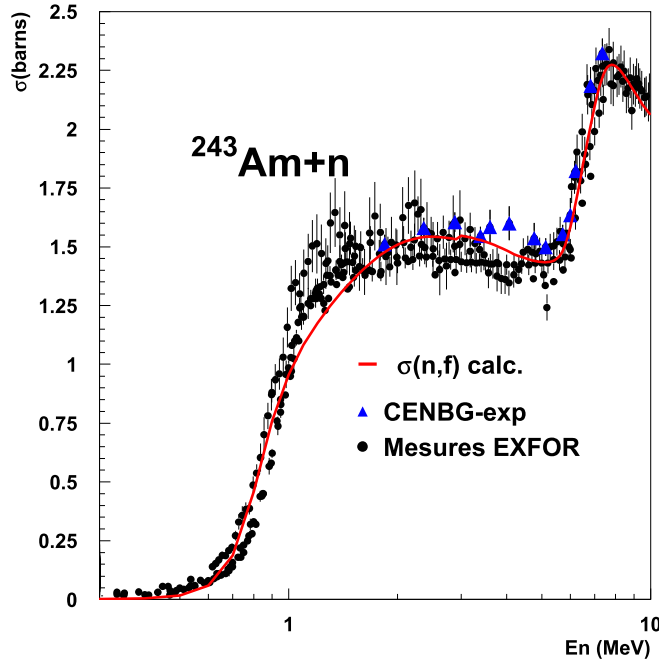


FIG. 3.26 – Section efficace de fission de ^{243}Am calculée en comparaison aux résultats expérimentaux.

Cette analyse nous a également permis de déterminer les sections efficaces de capture radiative $^{243}\text{Am}(n, \gamma)$ et de diffusion inélastique $^{243}\text{Am}(n, n')$. La figure (fig.3.27) présente ces sections efficaces. La section efficace de capture radiative est comparée aux mesures de K.Wisshak et al. [Wi83] extraites de la base de données EXFOR. Ce sont les seules données expérimentales disponibles dans la zone des neutrons rapides d'énergie supérieure à 30 keV. Au-delà de 220 keV, aucune mesure n'a encore été effectuée. On remarquera que notre calcul reproduit d'une manière satisfaisante ces mesures.

La section efficace totale de diffusion inélastique ainsi que les sections efficaces inélastiques partielles pour quatre états résiduels de ^{243}Am . La mesure de ces sections efficaces inélastiques sont extrêmement difficiles à réaliser. Notre approche permet donc ici de combler le manque de données expérimentales.

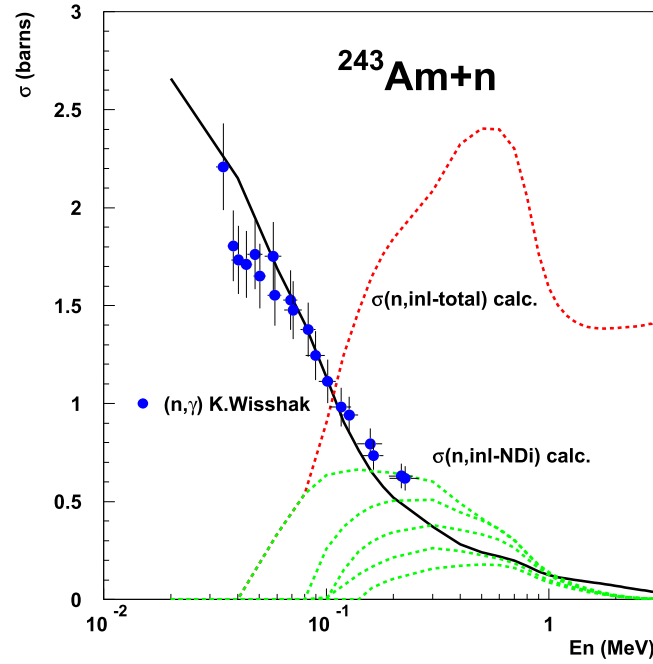


FIG. 3.27 – *Evaluation des sections efficaces inélastique (en rouge) et de capture (en noir) de $l^{243}\text{Am}$ dans le domaine des neutrons rapides $[0,01;10]\text{MeV}$. Cette dernière section efficace est comparée aux données expérimentales de K. Wisshak et al. [Wi83]. Les courbes en vert présentent les sections efficaces inélastiques partielles pour quatre états résiduels de $l^{243}\text{Am}$.*

Conclusion

La section efficace de fission de ^{243}Am a été mesurée par rapport à la section efficace de diffusion élastique de la réaction $\text{H}(n,p)$. C'est la première fois que cette technique est mise en œuvre pour cette réaction puisque toutes les mesures accessibles ont été réalisées à partir de la réaction $^{235}\text{U}(n,f)$. Nos résultats confirment l'ensemble des bases de données qu'une mesure récente semblait remettre en cause. Les mesures ont été réalisées et parfois répétées sur des installations différentes. La bonne cohérence des séries de mesures suggère que les effets systématiques ont bien été pris en compte. La définition des erreurs et leur propagation génèrent un lien entre les différentes expériences réalisées, ces erreurs sont décrites par la matrice des variances-covariances des mesures.

Un modèle statistique de type Hausser-Feshbach a été utilisé pour décrire la section efficace de fission de la réaction $^{243}\text{Am}(n,f)$. Ceci nous a permis de contraindre le modèle utilisé. Les sections efficaces difficiles à mesurer telles que $^{243}\text{Am}(n,\gamma)$ et $^{243}\text{Am}(n,n')$ ont été déduites de cette analyse.

Chapitre 4

Sections efficaces de fission des $^{242,243}\text{Cm}$

Dans le chapitre 2, nous avons discuté des méthodes de substitution existantes pour mesurer des sections efficaces de fission. Pour atteindre des isotopes du curium à partir d'un élément plus léger, le choix des mesures absolues des probabilités de fission est incontournable. Le groupe ACEN a développé un dispositif permettant d'étudier par réactions de transfert la fission d'éléments très radioactifs tels que le $^{233}\text{Pa}(27j)$ [Pe02]. Dans ce chapitre, nous présenterons le dispositif expérimental utilisé pour mesurer les isotopes du curium $^{242}\text{Cm}(162j)$ et $^{243}\text{Cm}(29ans)$, puis l'analyse des données avant de discuter des résultats obtenus.

4.1 Dispositif expérimental

4.1.1 La cible ^{243}Am

La cible est constituée d'un dépôt d'américium ^{243}Am de 6 mm de diamètre sur un film de carbone de $75\mu\text{g}/\text{cm}^2$. La fabrication de cette cible a été faite en deux étapes. La première concerne la fabrication par électrodéposition. Cette opération a été réalisée au Laboratoire National d'Argonne [Gre04]. Deux dépôts de 6 mm de diamètre ont été réalisés sur un film de carbone ($75\mu\text{g}/\text{cm}^2$) déposé sur une lame de verre. Ce type de conditionnement nous a permis de transporter vers la France en toute sécurité les dépôts actifs. Le montage définitif des cibles a été réalisé à l'IPN Orsay. Après chauffage (400°C pendant une heure), le film de carbone est détaché du support dans un cristalliseur contenant de l'eau distillée puis placé sur un cadre d'aluminium ($20 \times 20 \times 0.5\text{mm}^3$). La cible est alors prête pour son irradiation. Une spectrométrie α a été réalisée pour vérifier sa pureté isotopique en éléments lourds émetteurs α .

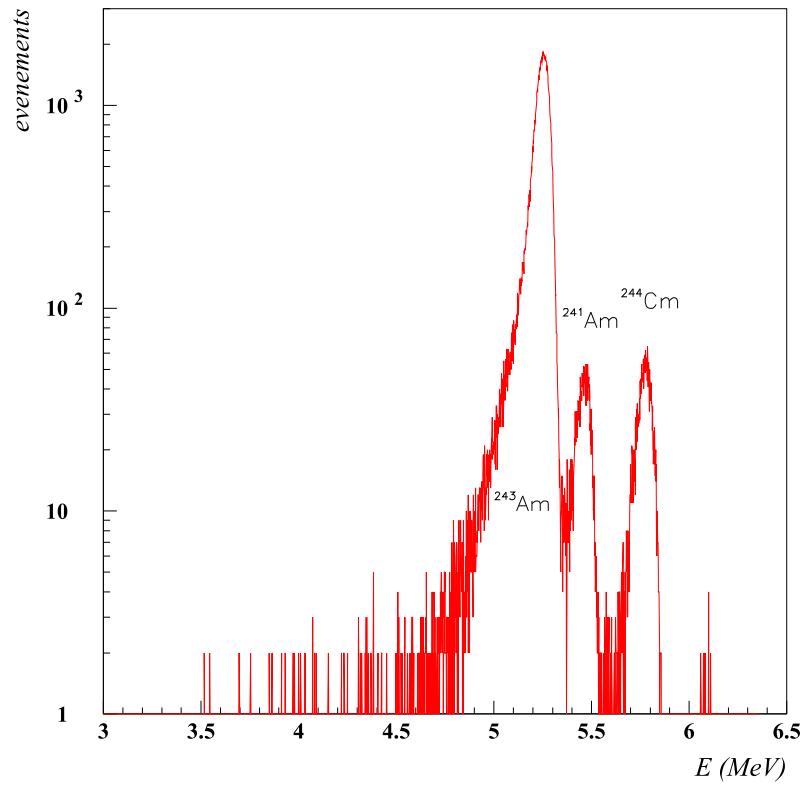


FIG. 4.1 – Spectrométrie α de la cible de ^{243}Am : de gauche à droite, les particules α de ^{243}Am , du ^{241}Am et du ^{244}Cm .

La spectrométrie montre la présence de trois isotopes dans la cible : ^{243}Am majoritairement et des traces de ^{241}Am et ^{244}Cm . La pureté en ^{243}Am est de 99,85% ($\pm 0,01$ %) pour $\sim 43 \mu\text{g}$ de matière.

noyaux (AX)	$A_0(^AX)$ kBq	N_{AX} (atomes)	m_{AX} (μg)	incertitude (%)	pureté en ^{243}Am (%)
^{243}Am	317,8	$1,066 \cdot 10^{17}$	43,02	$\pm 0,23$	99,85 ($\pm 0,01$) %
^{241}Am	7,88	$1,551 \cdot 10^{14}$	0,062	$\pm 0,0012$	-
^{244}Cm	9,66	$7,960 \cdot 10^{12}$	0,00323	$\pm 0,00006$	-

TAB. 4.1 – Caractéristiques de la cible de ^{243}Am sur support mince de carbone ($75 \mu\text{g}/\text{cm}^2$).

4.1.2 La chambre de réactions

4.1.2.a Le faisceau et la chambre

La chambre se présente comme un cylindre droit muni de deux sas (fig.4.2) : celui du bas contient la cible active d' ^{243}Am , le sas supérieur porte les échantillons nécessaires à la calibration des détecteurs de particules légères et à la mesure de bruit de fond. L'enceinte est placée sous vide secondaire pour être reliée à l'accélérateur. Une fois le vide réalisé, il est possible de positionner les cibles, actives ou stables, sans perturber le dispositif. L'intensité du faisceau est de 50 nAe pour limiter la diffusion élastique sur la cible et son support. Un troisième sas est utilisé en début et fin d'expérience pour placer une source de californium ^{252}Cf dans le but de mesurer l'efficacité de détection de fragments de fission. Après traversée de la chambre, le faisceau d' ^3He est arrêté dans une cage de Faraday reliée à un intégrateur permettant de mesurer la charge déposée afin de normaliser les différentes mesures.

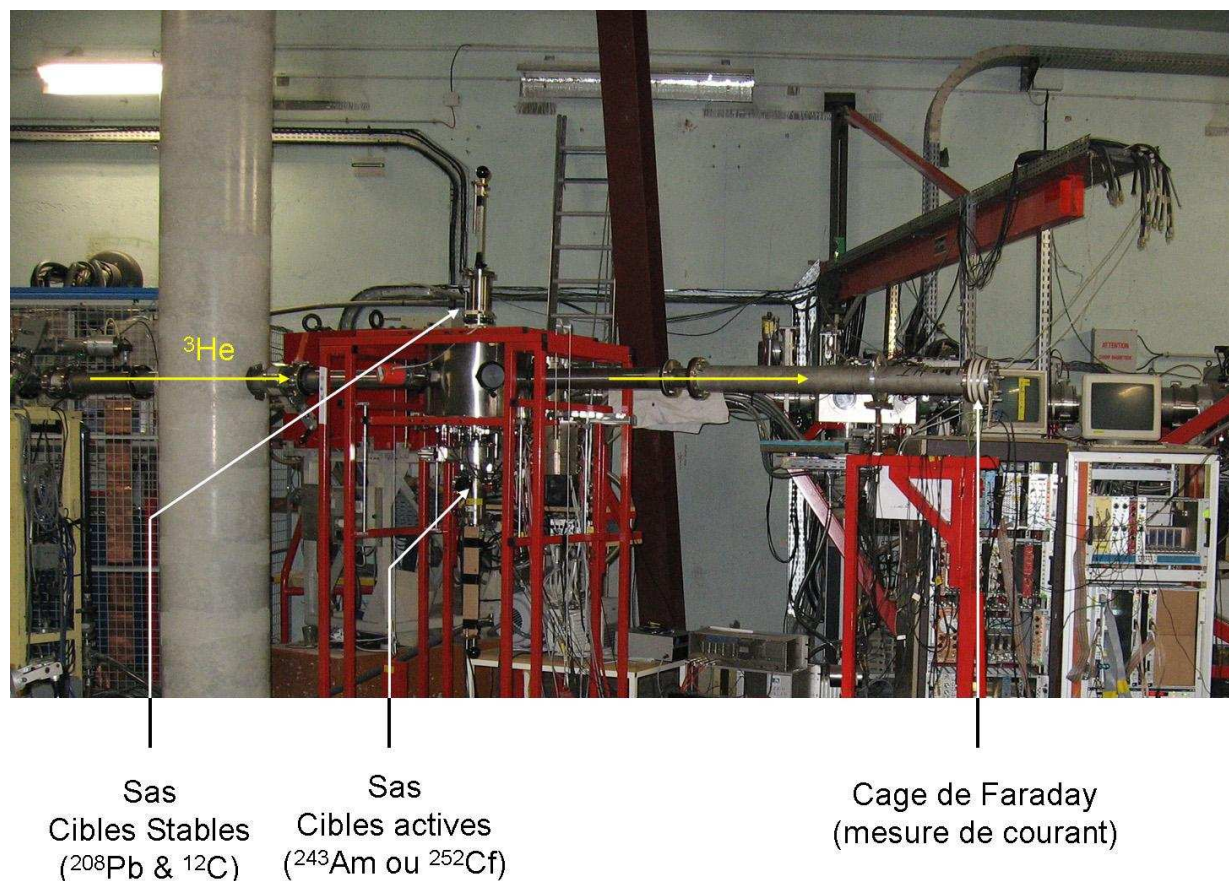


FIG. 4.2 – Dispositif expérimental : le faisceau d' ^3He arrive par la gauche pour interagir avec une cible (active ou inerte). En bout de ligne, une cage de Faraday mesure la charge déposée afin de normaliser les mesures de bruit de fond.

4.1.2.b Détecteurs de particules légères et des fragments de fission

Un dispositif mécanique a été réalisé pour l'utilisation sous faisceau d'une cible d' ^{243}Am . L'esprit et le principe de la détection des particules et des fragments de fission restent ceux qui ont été utilisés pour la détermination du protactinium ^{233}Pa . Les particules légères sont toujours détectées aux angles arrière 90° et 130° . Pour augmenter l'efficacité de détection, le nombre de détecteurs est passé de 2 à 4. Deux groupes de détecteurs sont placés à 90° et 130° de part et d'autre ($\pm 17^\circ$) du plan horizontal. Chaque détecteur est constitué d'un montage télescope : une première jonction silicium montée en transmission ΔE (épaisseur $150\ \mu\text{m}$) et les particules sont arrêtées par une jonction silicium-lithium E (épaisseur $5000\ \mu\text{m}$). Chaque télescope est muni d'un collimateur en tantale de 7 mm d'ouverture sur lequel est placé un écran d'aluminium de $29\ \mu\text{m}$ afin de ne pas dégrader le télescope par les particules α de l' ^{243}Am et les fragments de fission.

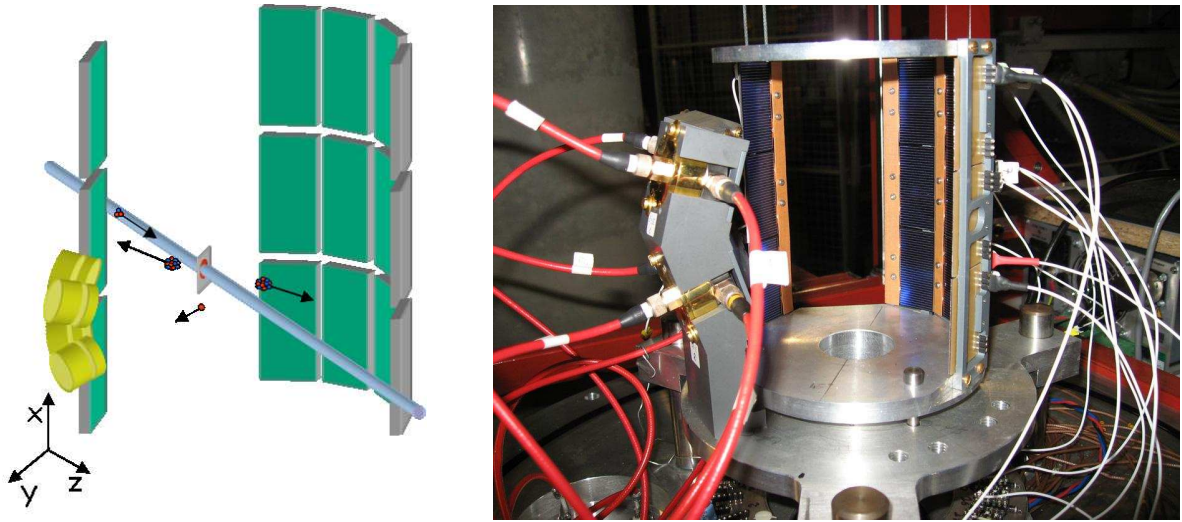


FIG. 4.3 – Détecteurs de particules chargées (télescopes Si à gauche) et de fragments de fission (cellules photovoltaïques placées sur un cylindre).

La détection des fragments de fission est réalisée à partir des mêmes cellules photovoltaïques utilisées dans l'expérience $^{243}\text{Am}(n, f)$, en raison de leur grande résistance aux particules α émises par la cible, aux fragments de fission générés et au taux d' ^3He diffusé par les éléments de la cible. Comme le montre la figure (fig.4.3), le détecteur fission est composé de cinq plans de trois cellules placés sur un cylindre dont le rayon est de $\sim 5\ \text{cm}$. Deux plans de cellules sont placés en coïncidence de part et d'autre de la cible. Ainsi, l'angle solide couvert représente près de $2\pi\ \text{sr}$. Les caractéristiques essentielles de l'expérience sont rappelées dans le tableau (tab. 4.2).

	Cibles				
Cible ^{243}Am	$43,02 \pm 0,01 \mu\text{g} - \sim 152\mu\text{g}/\text{cm}^2$				
Cible ^{208}Pb	$\sim 200\mu\text{g}/\text{cm}^2$				
Cible ^{12}C	$75\mu\text{g}/\text{cm}^2$				
	DéTECTEURS DE FRAGMENTS DE FISSION				
Barrette de cellules	1	2	3	4	5
angles médians des barrettes de détection (°)	27	56	85	114	207
distance cible - barrette de détection (mm)	51,16 $\pm 0,05$	50,82 $\pm 0,05$	50,57 $\pm 0,05$	50,33 $\pm 0,05$	50,58 $\pm 0,05$
ouverture angulaire d'une barrette de détection (°)	10,9				
cotes moyennes des cellules	$20,8 (\pm 0,1) \times 40,22 (\pm 0,1) \text{ mm}^2$				
Surface moyenne apparente des cellules	$19,8 (\pm 0,1) \times 40,2 (\pm 0,1) \text{ mm}^2$				
efficacité intrinsèque des cellules	96, ($\pm 1,$)%				
efficacité géométrique globale du détecteur fission	45,7 ($\pm 1,0$)%				
	DéTECTEURS DE PARTICULES LÉGÈRES				
Angles Télescopes	90°			130°	
jonction Si ΔE	150 μm				
jonction Si E	5000 μm				
distance cible- télescope	5 cm				
collimateur détecteur	mesure : $\phi = 7 \text{ mm}$; étalonnage : $\phi = 2 \text{ mm}$				
écran d'aluminium	29 μm				

TAB. 4.2 – Paramètres du dispositif "transfert".

4.1.2.c Acquisition des données

Le système d'acquisition doit permettre d'enregistrer deux types d'événements :

- les particules légères détectées par l'un des quatre télescopes ; les taux de comptage correspondent aux nombres de noyaux formés dans les voies de transfert que l'on identifie à partir des signaux ΔE_j et E_j détectés par le télescope j ($j = 1 ; 4$).
- Les coïncidences entre l'un des quatre télescopes et les fragments de fission détectés par l'une des quinze cellules.

La prise de données est déclenchée par le premier étage ΔE du télescope sollicité. Les événements enregistrés sont ΔE_j et E_j et s'il y a coïncidence, le numéro k, l'amplitude P_k de la cellule k ayant détecté un fragment et le temps d'arrivée t_k de cette impulsion dans une fenêtre en temps de 380 ns après le signal de déclenchement. La configuration des cellules permet d'enregistrer simultanément un seul ou les deux fragments de fission émis dans la réaction. Le système d'acquisition est constitué autour d'un ensemble VME pilotant deux cartes VXI de seize voies

chacune. La première carte est dédiée aux quinze cellules ; elle gère les signaux provenant des quinze préamplificateurs placés directement dans l'enceinte à vide. Chaque voie délivre l'amplitude et l'information temps. Ces deux informations sont codées sur 8192 canaux. L'électronique équipant les quatre télescopes est une électronique discrète au standard NIM. Chaque élément du télescope est équipé d'un préamplificateur de champ, d'une chaîne énergie et d'une chaîne temps (pour la voie ΔE). Un OU logique formé par les quatre télescopes fournit le signal de prise de données à l'acquisition. Là encore, les amplitudes des signaux provenant des télescopes sont codées sur 8192 canaux.

4.2 Analyse de données

Pour chaque télescope, une analyse indépendante des probabilités de fission va être réalisée. Cette analyse va se faire en trois étapes : l'étalonnage des télescopes et l'identification des voies de réaction. On construit ensuite les spectres de particules avec et sans coïncidence avec la fission. Après soustraction du bruit de fond, ces deux quantités vont nous permettre de déterminer les probabilités de fission des noyaux lourds formés.

4.2.1 Les différentes voies de réactions

4.2.1.a Etalonnage des télescopes

L'objectif de l'expérience est de produire les isotopes souhaités de curium sur une plage en énergie d'excitation comprise entre 0,1 et 15 MeV. Ainsi, les ^3He incidents à la cible ont une énergie de $E_{pro} = 24 \text{ MeV}$ de sorte que la particule éjectée ait suffisamment d'énergie pour être identifiée par le télescope. Les particules éjectées (p, d, t, ^3He , α) ont une énergie comprise entre 5 MeV (seuil du télescope) et 30 MeV. Il n'est donc pas suffisant d'étalonner les détecteurs avec une source de particules α dont l'énergie n'excède pas 6-7 MeV et ne traversent pas la jonction ΔE du télescope. La méthode choisie consiste à utiliser deux réactions de transfert sur un noyau bien connu (^{208}Pb) afin de générer des particules légères avec une énergie correspondant à la dynamique des détecteurs utilisés. Ainsi les premiers états excités des noyaux produits (^{209}Bi , ^{207}Pb) par les réactions $^{208}\text{Pb}(^3\text{He}, d)^{209}\text{Bi}^*$ et $^{208}\text{Pb}(^3\text{He}, \alpha)^{207}\text{Pb}^*$ sont connus avec une précision suffisante (meilleure que la résolution de nos détecteurs $\sim 50 \text{ keV}$) (cf. tab.4.3). Expérimentalement, on place une cible de ^{208}Pb dans l'enceinte et les collimateurs des télescopes sont réduits à 2 mm de diamètre pour limiter l'élargissement cinématique des pics dû à l'ouverture angulaire des détecteurs.

Noyau	Q (MeV)	état fond. (MeV)	états excités (MeV)					
^{209}Bi	-1,696	0,0	0,890	1,608	2,826	3,119	3,638	4,421
^{207}Pb	13,21	0,0	0,570	0,898	1,633	2,340	3,475	

TAB. 4.3 – *Etats excités des noyaux de ^{209}Bi et ^{207}Pb utilisés pour étalonner les télescopes.*

Les particules éjectées, deutons ou α , sont identifiées et sélectionnées graphiquement en représentant la perte d'énergie ΔE en fonction de l'énergie résiduelle détectée par la jonction E_{res} . Sur la figure (fig.4.4) on observe distinctement les hyperboles des deutons et des α , et les premiers états excités du ^{209}Bi et ^{207}Pb . Chaque télescope est ainsi étaloné avec les deux réactions. La réponse en énergie de chaque élément des télescopes est bien reproduite par une fonction linéaire de l'amplitude x. Les coefficients de ces droites de calibration, bien que cohérents pour les deux voies (d et α), présentent un écart systématique suivant la particule détectée. Ce problème est contourné en utilisant l'étalonnage réalisé avec les deutons pour les

isotopes de l'hydrogène; l'étalonnage avec les particules α est seulement utilisé pour cette même voie.

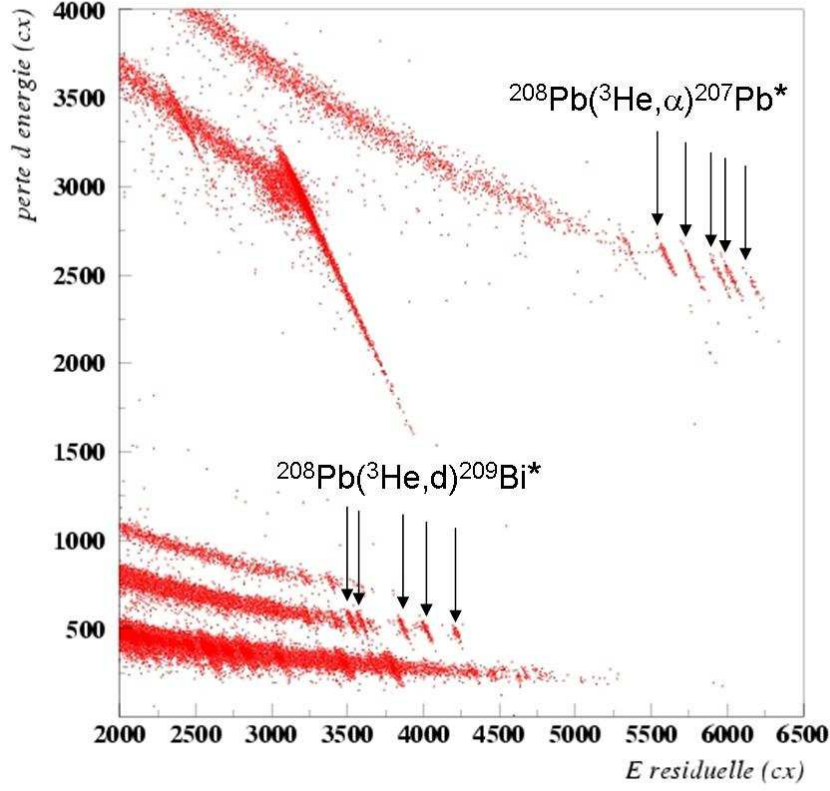


FIG. 4.4 – Etalonnage des télescopes par deux réactions sur le ^{208}Pb pour former les états excités du ^{209}Bi et du ^{207}Pb .

Ainsi, pour chacune des voies et chaque télescope, les coefficients et leurs erreurs sont calculés (tab.4.4). Les spectres de particules détectées ($N(E_{ej})$) à l'angle θ_{ej} sont traduits en énergie d'excitation suivant la relation (chap.2.3, eq.2.39). L'erreur¹ totale sur l'énergie d'excitation E^* tient compte des erreurs d'étalonnage ($\sigma_{E_{ej}}$) et de l'élargissement cinématique ($\sigma_{\theta_{ej}}$) :

$$(\sigma_{E^*})^2 = \left(\frac{m_{rec} + m_{ej}}{m_{rec}} \right)^2 (\sigma_{E_{ej}})^2 + \frac{m_{pro} \cdot m_{ej} \cdot E_{pro} \cdot E_{ej}}{(m_{rec})^2} \cdot \left(\cos^2(\theta_{ej}) \cdot \left(\frac{\sigma_{E_{ej}}}{E_{ej}} \right)^2 + \sin^2(\theta_{ej}) \cdot (\sigma_{\theta_{ej}})^2 \right) \quad (4.1)$$

¹On négligera les erreurs sur l'énergie du faisceau (E_{pro}) et la chaleur de réaction (Q) beaucoup plus petite que les résolutions des détecteurs ($\sigma_{E_{pro}} \lesssim 20\text{keV}$).

Pour des noyaux lourds de recul ($m_{rec} \sim 244 \text{ GeV}/c^2$), le terme lié à l'ouverture angulaire des détecteurs est faible. L'écart type associé à l'énergie d'excitation est quasi-proportionnel à l'erreur sur la calibration des détecteurs. Pour les noyaux légers, l'ouverture angulaire des détecteurs explique un élargissement cinématique des pics en fonction de l'énergie d'excitation. Le tableau suivant (tab.4.4) présente l'écart type de l'énergie d'excitation en fonction de l'énergie des deutons détectés pour les deux angles de détection θ_{ej} (90° et 130°). On constate que l'erreur est la plus importante à basse énergie d'excitation au voisinage du seuil de première chance de fission ($\sim 6 \text{ MeV}$). Cette erreur sur la détermination en énergie d'excitation et la statistique des taux de comptage fixent le pas en énergie (binning) utilisé dans l'analyse ($\Delta E^* \sim 200 \text{ keV}$).

canal	E_{ej}	$\sigma_{E_{ej}}$	E^*	σ_{E^*}	E^*	σ_{E^*}
	(MeV)	(MeV)	90°	90°	130°	130°
			(MeV)	(MeV)	(MeV)	(MeV)
1	0,288	0,003	23,93	0,007	23,90	0,006
100	1,060	0,006	23,15	0,014	23,09	0,012
500	4,179	0,027	20,00	0,037	19,88	0,033
1000	8,078	0,054	16,08	0,064	15,90	0,060
1500	11,97	0,080	12,15	0,091	11,93	0,087
2000	15,87	0,107	8,215	0,118	7,963	0,114
2500	19,77	0,134	4,284	0,145	4,002	0,141

TAB. 4.4 – Erreur associée à l'énergie d'excitation (E^*) pour la voie deuton ($^{243}\text{Am}(^3\text{He}, d)^{244}\text{Cm}^*$) pour les deux angles de détection (90° et 130°) en fonction de l'énergie des deutons éjectés.

4.2.1.b Identification des voies de réactions et spectres de particules associés

Pour chaque télescope, on sélectionne les particules (p, d, t, et α) détectées. Cette opération est effectuée graphiquement à partir de la visualisation des graphes à deux dimensions $E \times \Delta E$. La figure (fig. 4.5) illustre cette représentation pour l'un de nos télescopes.

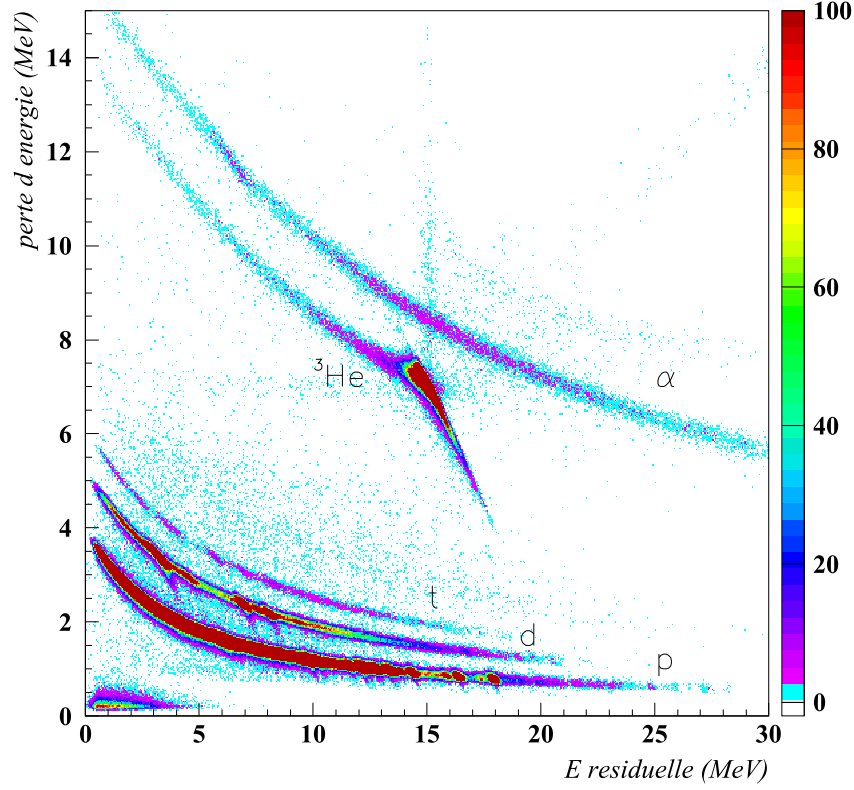


FIG. 4.5 – Perte d'énergie (ΔE) en fonction de l'énergie résiduelle. On discerne parfaitement les cinq hyperboles correspondant (de bas en haut) aux protons, deutons, tritons, ^3He et α .

On obtient le nombre de noyaux de $^{245}\text{Cm}^*$, $^{244}\text{Cm}^*$, $^{243}\text{Cm}^*$ et $^{242}\text{Am}^*$ formés et identifiés en fonction de leur énergie d'excitation. Ce premier tri génère 16 spectres de particules pour les quatre télescopes. La figure (fig.4.6) présente les spectres de protons, deutons, tritons et α détectés pour deux des télescopes placés respectivement à 90° et 130° . On remarquera que tous les spectres présentent un fond continu auquel s'ajoute une sous-structure discrète particulièrement dense dans la voie proton. La même figure présente les spectres de particules correspondant aux mesures de bruit de fond avec le même support de carbone que celui utilisé pour la cible d' ^{243}Am . On remarquera que la sous-structure provient en grande partie du support de carbone (98.9% de ^{12}C et 1.1% de ^{13}C) ; elle correspond aux premiers états excités des $^{14,15}\text{N}$ (proton), $^{13,14}\text{N}$ (deuton), $^{12,13}\text{N}$ (triton) et $^{11,12}\text{C}$ (α). Pour toutes les voies de réaction, cette sous-structure s'atténue et se déplace vers les grandes énergies d'excitation quand on passe de 90° à 130° .

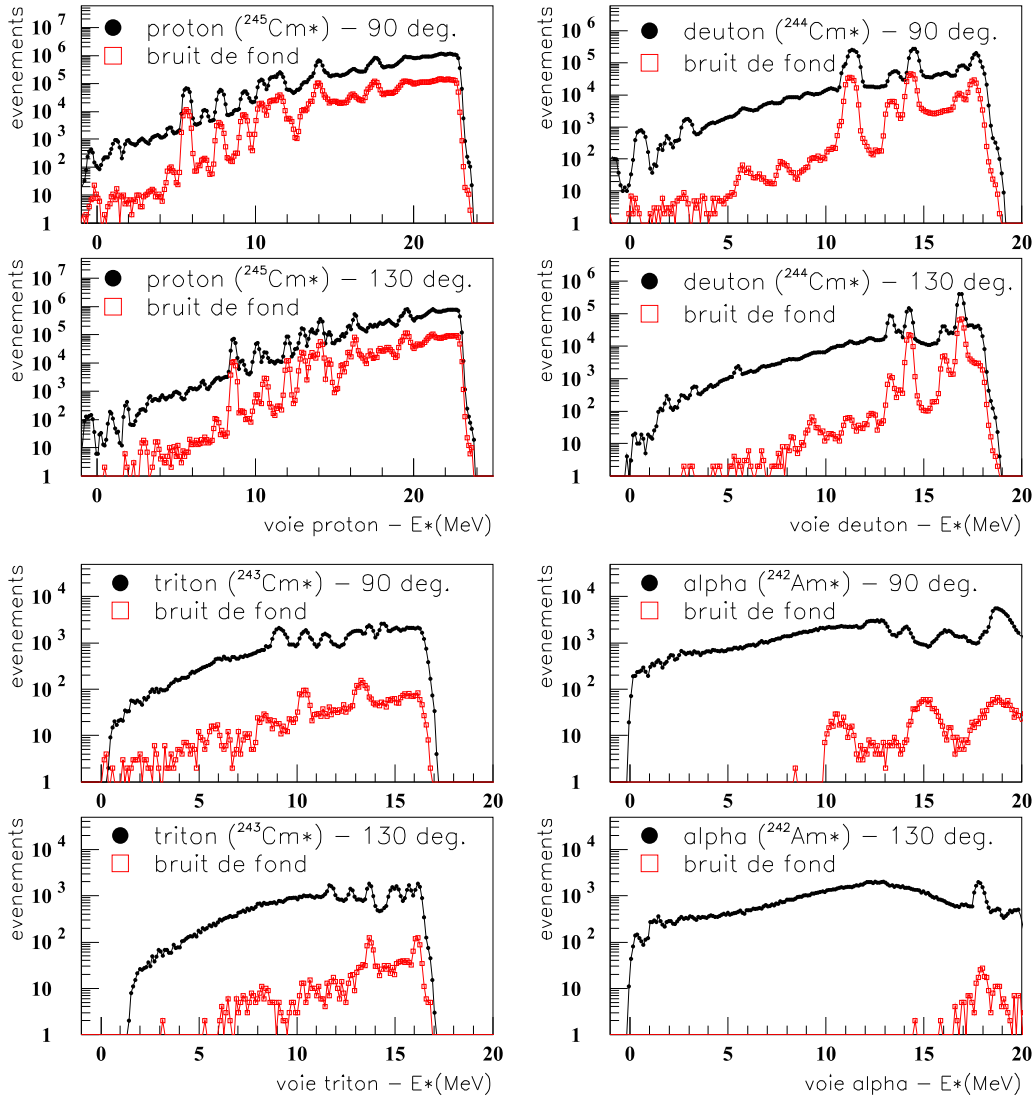


FIG. 4.6 – Spectres de particules (p , d , t , et α) en fonction de l'énergie d'excitation¹ du noyau formé, respectivement, les $^{245}\text{Cm}^*$, $^{244}\text{Cm}^*$, $^{243}\text{Cm}^*$ et $^{242}\text{Am}^*$. Les cercles noirs représentent le nombre de noyaux identifiés par énergie d'excitation; les carrés rouges présentent les spectres de bruit de fond obtenus après irradiation d'un support vierge.

On sélectionne ensuite les particules détectées en coïncidence avec un ou deux fragments de fission détectés afin d'obtenir le nombre de noyaux de $^{245}\text{Cm}^*$, $^{244}\text{Cm}^*$, $^{243}\text{Cm}^*$ et $^{242}\text{Am}^*$ qui

¹Les événements présentant une énergie d'excitation négative correspondent nécessairement à des réactions sur des noyaux autres que ^{243}Am . On rappelle que les énergies d'excitation sont calculées pour le noyau lourd de recul de la voie considérée (ie les ^{245}cm , ^{243}cm , ^{244}cm et ^{242}Am correspondant respectivement aux éjectiles p , d , t , α (eq.2.39)).

ont fissionné, à l'efficacité du détecteur de fission près (fig.4.7). Au contraire des précédents, ces spectres ne présentent pas de structure particulière dans la même gamme d'énergie d'excitation.

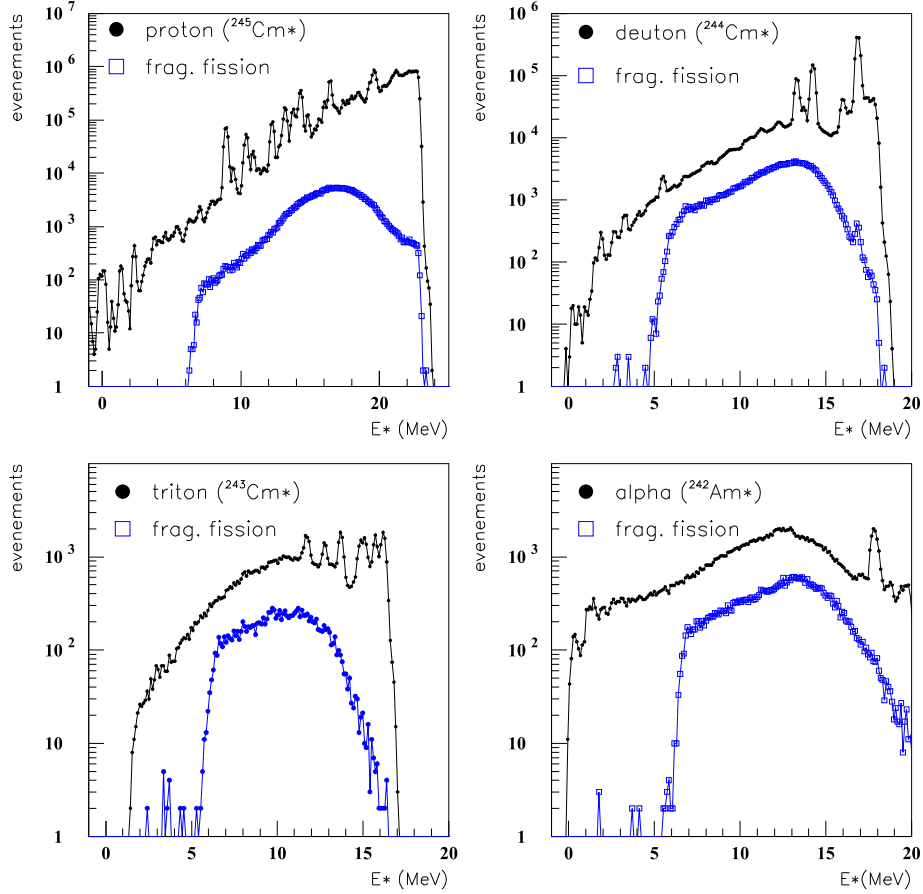


FIG. 4.7 – Spectres de particules (p , d , t , et α) en fonction de l'énergie d'excitation du noyau formé, respectivement, les $^{245}\text{Cm}^*$, $^{244}\text{Cm}^*$, $^{243}\text{Cm}^*$ et $^{242}\text{Am}^*$. Les cercles noirs représentent le nombre de noyaux identifiés par énergie d'excitation; les carrés bleus correspondent au nombre de noyaux lourds formés en coïncidence avec un ou deux fragments de fission (télescope à 130°).

Les spectres bruts sont ensuite corrigés des coïncidences fortuites à partir de la distribution des temps d'arrivée des fragments dans une fenêtre de 380 ns après la détection de la particule légère associée. Les spectres en temps (fig.4.8) présentent une structure correspondant à l'empilement des spectres temps des quinze détecteurs de fragments de fission. Dans notre cas, le nombre de coïncidences fortuites représentent $\sim 1\%$ des fragments de fission détectés.

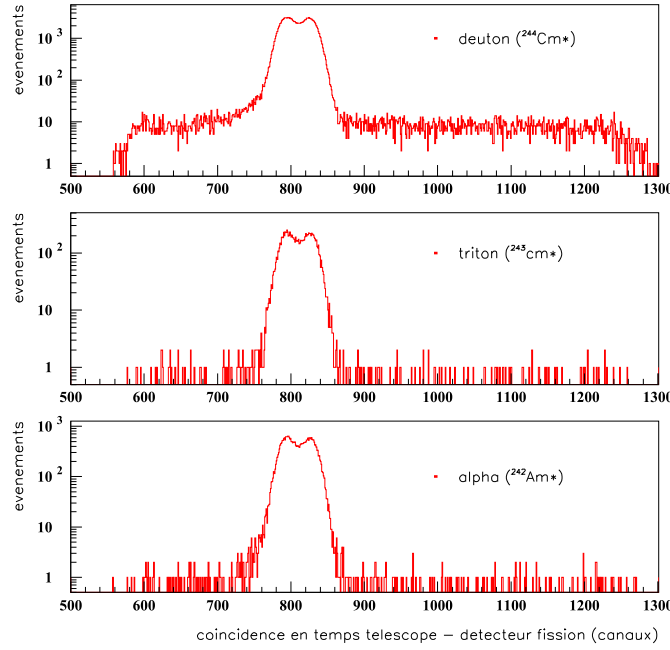


FIG. 4.8 – Spectres de coïncidence en temps entre le télescope et le détecteur de fragments de fission pour les voies d, t, et α sur une fenêtre en temps de 380 ns (télescope 3 - 130°).

4.2.2 Analyse des spectres de particules légères

La soustraction des événements de bruit de fond porte sur les spectres simples qui vont nous permettre de déterminer le nombre de noyaux lourds formés dans nos mesures. La première correction concerne la soustraction des événements liés aux réactions de transfert sur les deux isotopes (12 et 13) du support de carbone. La soustraction est effectuée directement sur les spectres à partir de la relation ci-dessous :

$$N_{mes}^x(E^*) = N_{part}^x(E^*) - f_{norm} \cdot N_{bdf}^x(E^*) \quad (E^*) \quad (4.2)$$

où

- $N_{mes}^x(E^*)$ est le nombre de particules x mesuré en fonction de l'énergie d'excitation ;
- $N_{part}^x(E^*)$ est le nombre de particules x détecté en fonction de l'énergie d'excitation avec la cible d' $^{243}\text{Am}^*$;
- $N_{bdf}^x(E^*)$ est le nombre de particules x détecté en fonction de l'énergie d'excitation pour une mesure de bruit de fond avec un support de carbone vierge ;
- f_{norm} est le facteur de normalisation des spectres de bruit de fond, obtenu par la mesure de la charge en ^3He déposée dans une cage de Faraday en aval du dispositif expérimental ;

- x est la nature de la particule détectée : p, d, t, ou α correspondant respectivement aux noyaux de $^{245}\text{Cm}^*$, $^{244}\text{Cm}^*$, $^{243}\text{Cm}^*$ et $^{242}\text{Am}^*$ formés.

La figure (fig.4.9) présente pour un des télescopes placés à 130° le résultat de cette soustraction.

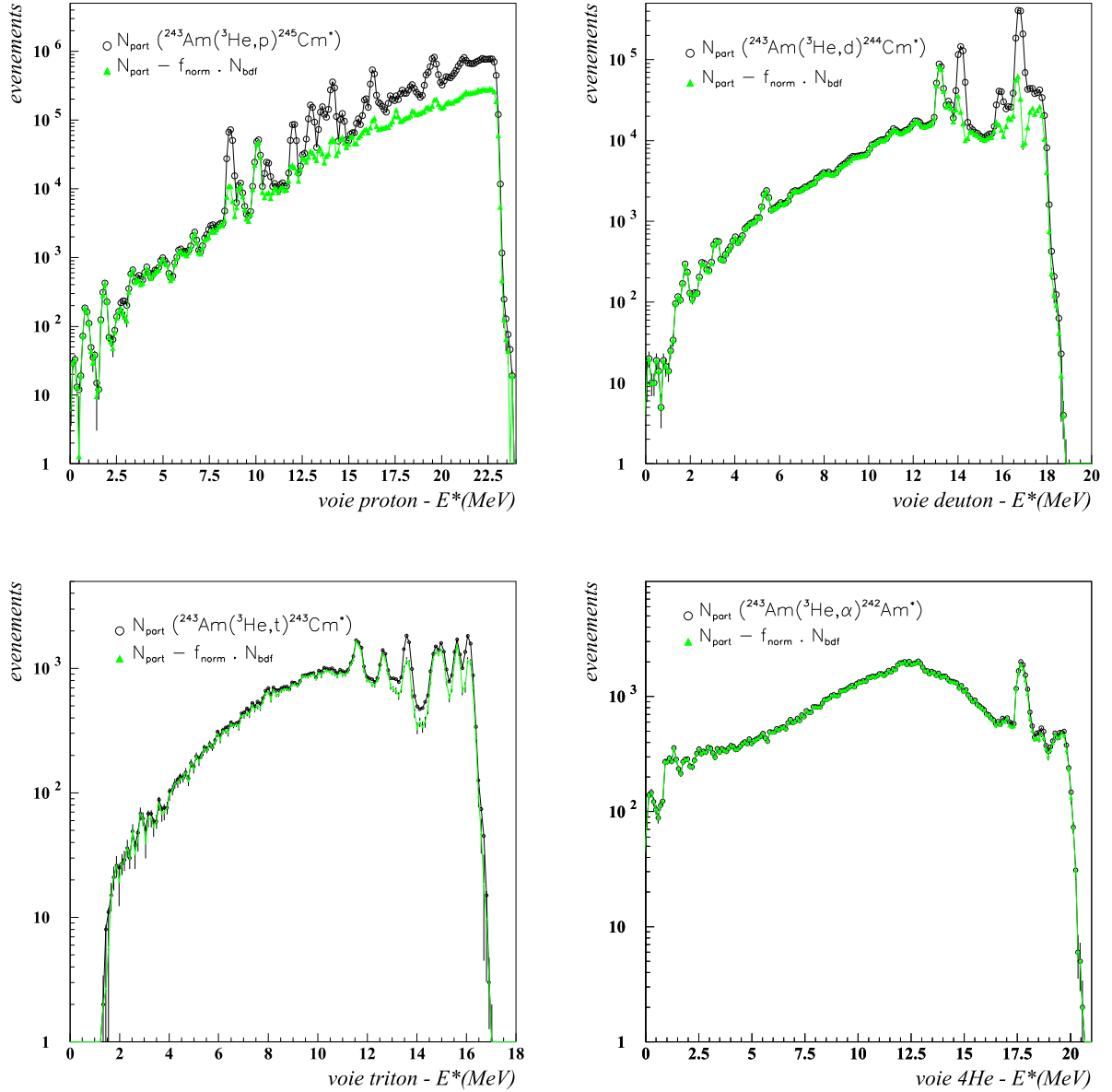


FIG. 4.9 – Spectres de particules avant et après soustraction du bruit de fond dû aux $^{12,13}\text{C}$ pour les quatre voies de réaction p, d, t, α (telescope 3 - 130°). La comparaison des spectres de particules bruts et ceux soustraits du bruit de fond (vert) montrent parfaitement les structures venant du ^{12}C et de ^{16}O provenant du dépôt d' AmO_2 .

On remarquera qu'il reste encore une structure dont une grande partie a pu être attribuée à l'oxygène à partir de l'irradiation d'un film de mylar dont la composition chimique est connue ($\text{C}_{10}\text{H}_8\text{O}_4$). Il s'agit du spectre en énergie des ^3He diffusés à 130° sur un film de mylar, le film de carbone mentionné ci-dessus et la cible d' ^{243}Am (fig.4.10). L'énergie du faisceau pour cette analyse était de 35 MeV. On retrouve les trois éléments C, H, O constituant le mylar ; on remarquera que le spectre de carbone présente des traces d'oxygène. En revanche, une quantité non-négligeable d'oxygène apparaît dans le dépôt d' ^{243}Am lui-même. Une analyse quantitative de ces spectres montre que le dépôt correspond à un oxyde de la forme Am_2O_3 ou AmO_2 .

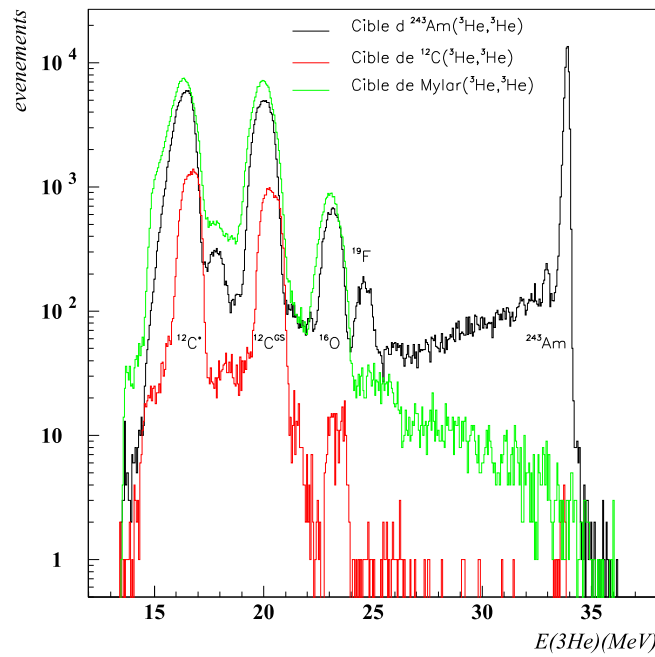


FIG. 4.10 – Spectre des ^3He diffusés sur les cibles d' ^{243}Am , de ^{12}C et de mylar. Pour le mylar, la largeur des pics est liée à l'épaisseur du film utilisé ($2,5\mu\text{m}$).

A proximité du pic associé à l'oxygène (diffusion élastique sur l'état fondamental) apparaît un pic que nous avons attribué au ^{19}F . La présence d'oxygène et de fluor est confirmée par l'existence, dans les spectres de particules chargées (p, d, t, α), de pics associés aux transferts sur ces éléments. Malheureusement toutes les impuretés présentes dans la cible n'ont pas été identifiées. Néanmoins, l'oxygène et le fluor sont certainement les plus importants. Leur contribution varie avec la voie de réaction et l'angle d'observation. Ceci est illustré par le tableau (tab.4.5) qui présente pour le carbone, l'oxygène et le fluor les seuils d'ouverture des voies de réactions parasites exprimés en fonction de l'énergie d'excitation du noyau fissionnant associé dont il pollue

le spectre.

Télescope à 90°				
contaminants	E^* (MeV) - voie de réaction			
	$(^3\text{He}, p)$	$(^3\text{He}, d)$	$(^3\text{He}, t)$	$(^3\text{He}, \alpha)$
^{12}C	5,36	11,59	23,15	23,51
^{13}C	-0,59	5,77	10,33	12,27
^{14}N	-5,31	5,54	3,65	15,80
^{16}O	6,56	10,80	20,21	18,56
^{19}F	-3,17	-1,21	8,85	12,84
E^* (MeV) - Télescope à 130°				
^{12}C	8,85	14,22	23,54	27,83
^{13}C	2,57	9,24	13,78	17,96
^{14}N	-2,07	8,83	7,76	20,71
^{16}O	8,84	13,27	21,53	22,68
^{19}F	-1,18	1,8	11,56	16,96

TAB. 4.5 – Réactions de transfert sur les principaux éléments légers pouvant être dans la cible $d^{243}\text{Am}$. Le tableau indique la position des pics (état fondamental du noyau formé) sur les spectres de particules en fonction de l'énergie d'excitation du noyau fissionnant.

Globalement, c'est la voie $(^3\text{He}, \alpha)$ qui est la moins affectée et plus particulièrement à 130° où la première réaction ouverte (sur le fluor) intervient au-delà de la gamme d'énergie d'excitation considérée dans ce travail. Ceci reste encore vrai pour la voie $(^3\text{He}, t)$. En revanche, les voies $(^3\text{He}, p)$ et $(^3\text{He}, d)$ pourraient être plus affectées par l'oxygène et le fluor. Après correction des événements liés au carbone, la soustraction des derniers événements liés à l'oxygène et au fluor a été réalisée à partir de segments de droite dont les extrémités encadrent les pics parasites associés à ces éléments. Cette procédure est illustrée pour l'un des télescopes à 130° par la figure (fig.4.11). Pour chaque voie, on représente le spectre après correction du carbone et l'élimination des dernières structures. La ligne continue représente le nombre de noyaux formés (N_v^x) en fonction de l'énergie d'excitation :

$$N_v^x(E^*) = (N_{part}^x - f_{norm} \cdot N_{bdf}^x - N_{cont}^x)(E^*) \quad (4.3)$$

où N_{cont}^x représente les événements éliminés correspondant aux réactions sur les éléments légers (contaminants) dans la voie $x \in \{d, t, \alpha\}$.

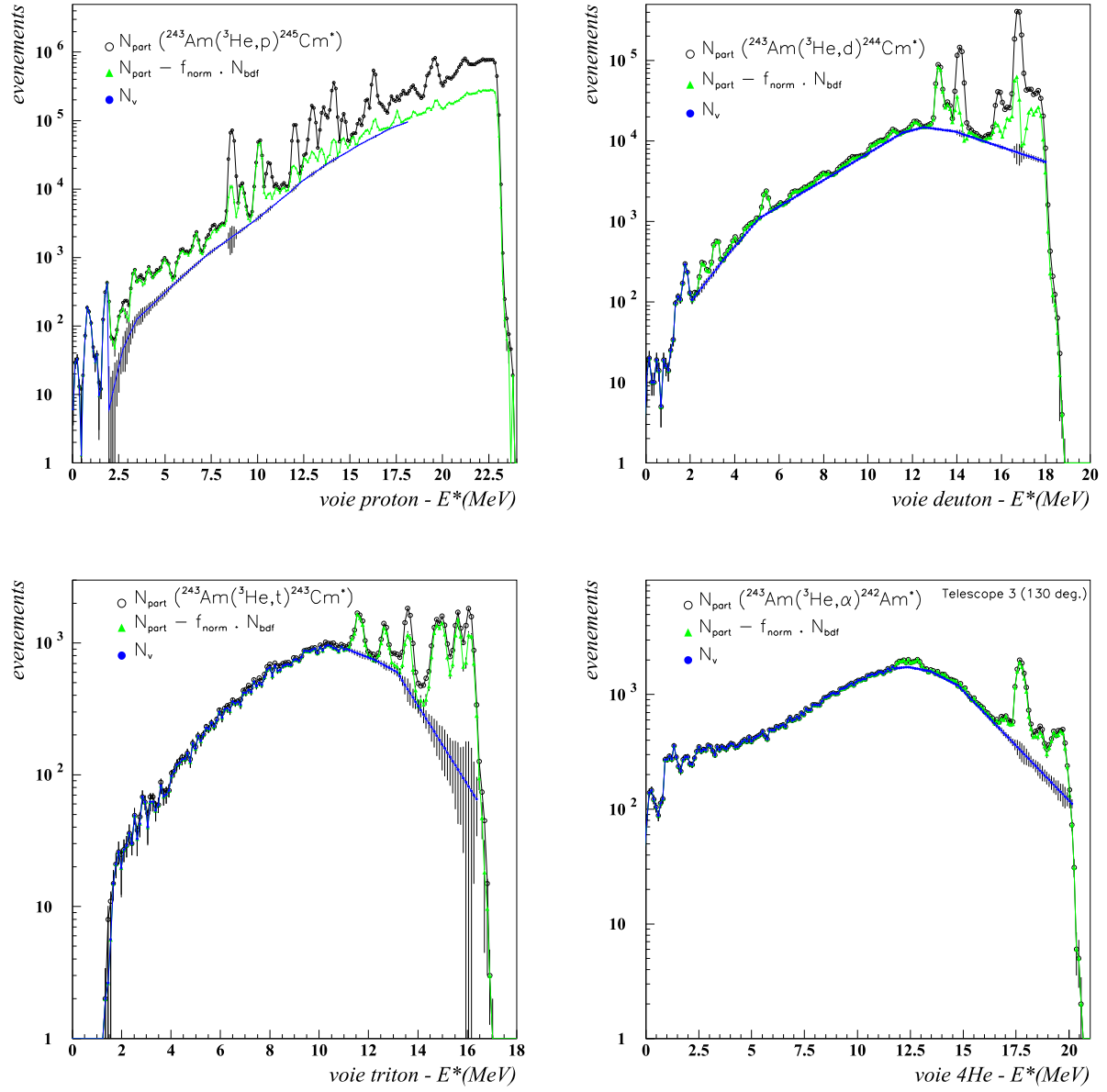


FIG. 4.11 – Spectres de particules corrigés pour les quatre voies de réaction p , d , t , α (téléscope 3 - 130°).

4.2.3 Efficacité de détection des fragments de fission

Nous venons de décrire les procédures qui nous ont permis de détecter dans chaque voie le nombre de noyaux fissionnants formés et le nombre de noyaux fissionnants dont ont été détectés un ou deux fragments de fission en coïncidence avec la particule chargée identifiant la voie. Cette dernière quantité doit être corrigée de l'efficacité de détection des fragments de fission. Cette efficacité de détection comprend l'efficacité géométrique du dispositif et l'efficacité de notre dispositif vis-à-vis d'une possible anisotropie d'émission dans le centre de masse du noyau fissionnant. Une étude détaillée de cette efficacité de détection a été réalisée à partir d'un calcul de simulation qui tient compte de la géométrie de détection des fragments de fission et des effets cinématiques inhérents à chaque voie de réaction. Dans le centre de masse du noyau fissionnant, la distribution angulaire est représentée par une fonction du type :

$$W(\theta_{cm}) = \left. \frac{dN_f^x}{d\omega_f^x} \right|_{cm} (E^*, \theta_{cm}) = a \cdot \cos^2(\theta_{cm}) + b \quad (4.4)$$

où

- N_f^x est le taux de comptage des fragments de fission dans la voie x ($x = p, d, t, \alpha$) à l'angle θ_{cm} et à l'énergie d'excitation E^* ;
- ω_f^x est l'efficacité à l'angle θ_{cm} et à l'énergie d'excitation E^* ;
- θ_{cm} représente l'angle d'émission du fragment par rapport à la direction du noyau de recul (centre de masse) ; les coefficients a et b définissant la distribution angulaire.

Le rapport d'anisotropie s'obtient simplement par la relation suivante :

$$\frac{W(0^\circ)}{W(90^\circ)} = 1 + \frac{a}{b} \quad (4.5)$$

La mesure de l'efficacité géométrique nous a permis de valider notre calcul de simulation. Cette efficacité géométrique a été mesurée avec une source de fission spontanée (^{252}Cf) d'activité connue. La figure (fig. 4.12) présente l'efficacité des quinze cellules composant le dispositif. Le groupe des cinq cellules centrées présente une efficacité environ deux fois plus grande que les deux groupes de cellules situées au-dessous et au-dessus de la cible. Dans l'exemple montré, la source de ^{252}Cf est légèrement décentrée par rapport à l'axe du montage. Ce décentrage explique la variation d'efficacité ($\pm 10\%$) entre les cellules avant (groupe à 27°) et arrière (groupe à 180°). Cette anisotropie induite par un décentrage de la source de 3 mm dans la direction du faisceau est bien reproduite par la simulation. Cette mesure et notre simulation donnent une efficacité géométrique de $(45,78 \pm 1)\%$. L'incertitude sur cette efficacité a été estimée à partir d'une étude systématique de la position de la cible distribuée dans une sphère de 3mm de rayon.

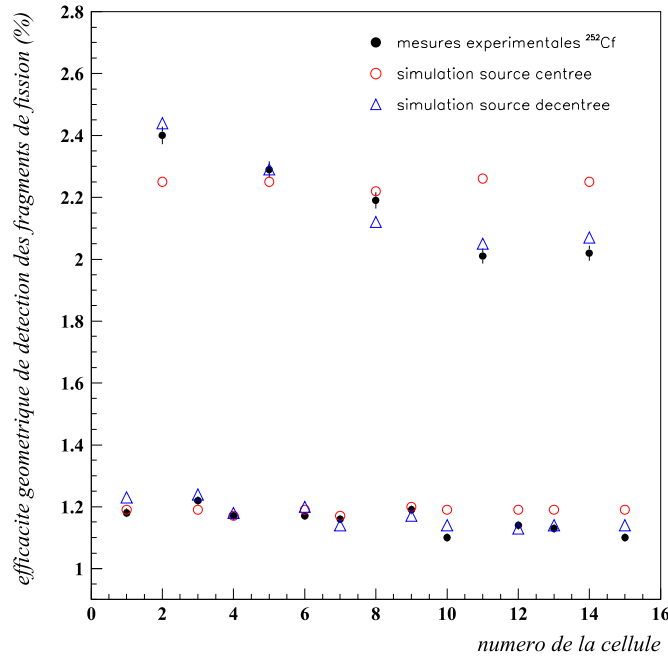


FIG. 4.12 – *Efficacité géométrique de détection de fission (pour un seul fragment).*

Les effets de l'anisotropie d'émission des fragments sur l'efficacité de détection ont été étudiés pour tous les noyaux fissionnants formés. Pour chaque voie de réaction, les distributions angulaires des fragments ont été déterminées en fonction de l'énergie d'excitation du noyau fissionnant. Pour des raisons de comptage, le pas en énergie d'excitation a été ajusté à l'alimentation des voies de réaction : 0,2 MeV pour les voies proton et deuton ; 0,4 MeV pour les tritons et les α . La figure (fig.4.13-a) présente un exemple de distribution angulaire pour la voie triton (système fissionnant ^{243}Cm). La figure (fig.4.13-b) présente pour cette même voie la variation du rapport d'anisotropie en fonction de l'énergie d'excitation. On a reporté les mesures effectuées en coïncidence avec les télescopes à 90° et 130° . On remarquera que ces deux mesures sont cohérentes entre elles. Pour alléger la procédure d'analyse, c'est la valeur moyenne de ces deux mesures que nous avons retenue pour la suite. On notera que cette anisotropie varie peu avec l'énergie d'excitation. Sa valeur moyenne se situant entre 1,2 et 1,3 pour cette voie de réaction, mais également pour les autres voies (deuton et α). L'impact de ces anisotropies sur l'efficacité de détection a été étudié à partir de notre calcul de simulation. Le résultat de cette étude est présenté sur la figure (fig.4.14). Pour la voie triton (^{243}Cm), l'efficacité de détection est relativement peu affectée par l'anisotropie d'émission des fragments de fission. Globalement, l'impact de cette anisotropie n'excède pas l'erreur due à la géométrie du montage. Dans la suite de notre travail, nous avons négligé cette anisotropie des fragments.

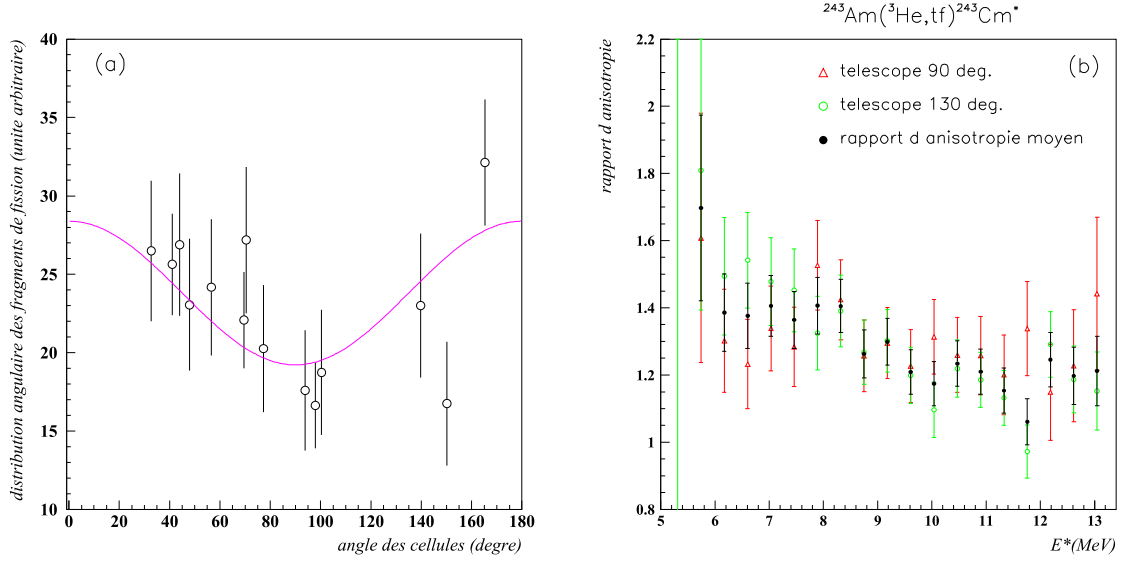


FIG. 4.13 – (a) Mesure du facteur d'anisotropie d'émission des fragments de fission du $^{243}\text{Cm}^*$: $\frac{W(0^\circ)}{W(90^\circ)}(E^* = 7,5 \text{ MeV}) = 1.47 \pm 0.17$; $\chi^2 = 0,96$.

(b) Mesures des rapports d'anisotropies $\frac{W(0^\circ)}{W(90^\circ)}$ en fonction de l'énergie d'excitation des noyaux formés dans les quatre voies de réaction p , d , t , α obtenues à 90° et 130° .

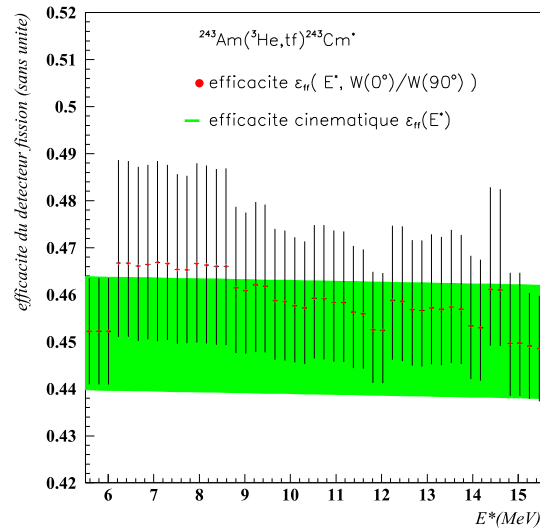


FIG. 4.14 – Efficacité cinématique de détection de fragments de fission en fonction de l'énergie d'excitation et du facteur d'anisotropie pour la voie triton (télescope 3 - 130° - haut).

4.3 Présentation des résultats

4.3.1 Probabilité de fission

Nous rappelons que pour chacune des voies de réaction, la probabilité absolue de fission s'exprime à partir de la relation suivante :

$$P_f^x(E^*) = \frac{N_f^x}{N_v^x \cdot \epsilon_f^x(E^*)} \quad (4.6)$$

Nous avons discuté dans les paragraphes précédents la méthode utilisée pour la détermination du nombre de noyaux lourds associés aux particules N_v^x , du nombre de fragments de fission de cette voie N_f^x corrigé de l'efficacité de détection ϵ_f^x de notre dispositif. Ces probabilités de fission ont été déterminées pour les quatre télescopes répartis en deux groupes situés respectivement à 90° et 130° par rapport au faisceau. Ces probabilités de fission sont présentées dans la partie gauche de la figure (fig.4.15). Nos résultats sont à comparer à ceux obtenus par A.Gavron et al. [Ga76] présentés dans la partie droite de la même figure. Ces anciennes mesures concernent uniquement les voies d, t, α . Nous allons tout d'abord discuter de ces trois voies. Les seuils de fission que nous avons mesurés sont en bon accord avec les mesures de A.Gavron et al.. En revanche, seules les mesures à 130° sont en bon accord avec les mesures de A.Gavron sur les plateaux de première chance de fission; nos mesures à 90° diffèrent notablement de celles mesurées à 130° , à la fois dans l'allure et la valeur absolue. Il s'agit d'un effet systématique que l'on retrouve sur chacune des trois voies (d, t, α). Nous pensons que ce désaccord provient d'une mauvaise soustraction du bruit de fond à 90° . A cet angle de détection, la sous-structure associée aux éléments légers recouvre en grande partie la gamme d'énergie d'excitation intéressante pour la fission (E^* comprise entre 5 et 15 MeV). Cet effet cinématique favorise les mesures à 130° en repoussant cette sous-structure à plus haute énergie d'excitation. C'est la raison pour laquelle nous avons décidé d'abandonner les mesures à 90° pour ne conserver par la suite que les mesures à 130° .

Nous avons par ailleurs été contraints de rejeter les voies protons pour les deux angles de mesure; les probabilités de fission n'excèdent pas 20% ce qui est anormalement très faible pour un noyau fissionnant (^{245}Cm) situé dans une région où les probabilités de fission dépassent 50%. Deux paramètres peuvent être erronée : le nombre de fragments de fission ou le nombre de protons. Compte tenu des résultats sur les voies (d, t, α), nous pouvons penser que le nombre de fragments de fission détectés est cohérent. Ceci indique alors clairement que le nombre de protons (N_v^p) est largement surévalué dans cette voie de réaction, alors que le seuil de fission est observé à l'endroit attendu pour ce noyau. Ce surplus de protons peut avoir deux origines : la cassure

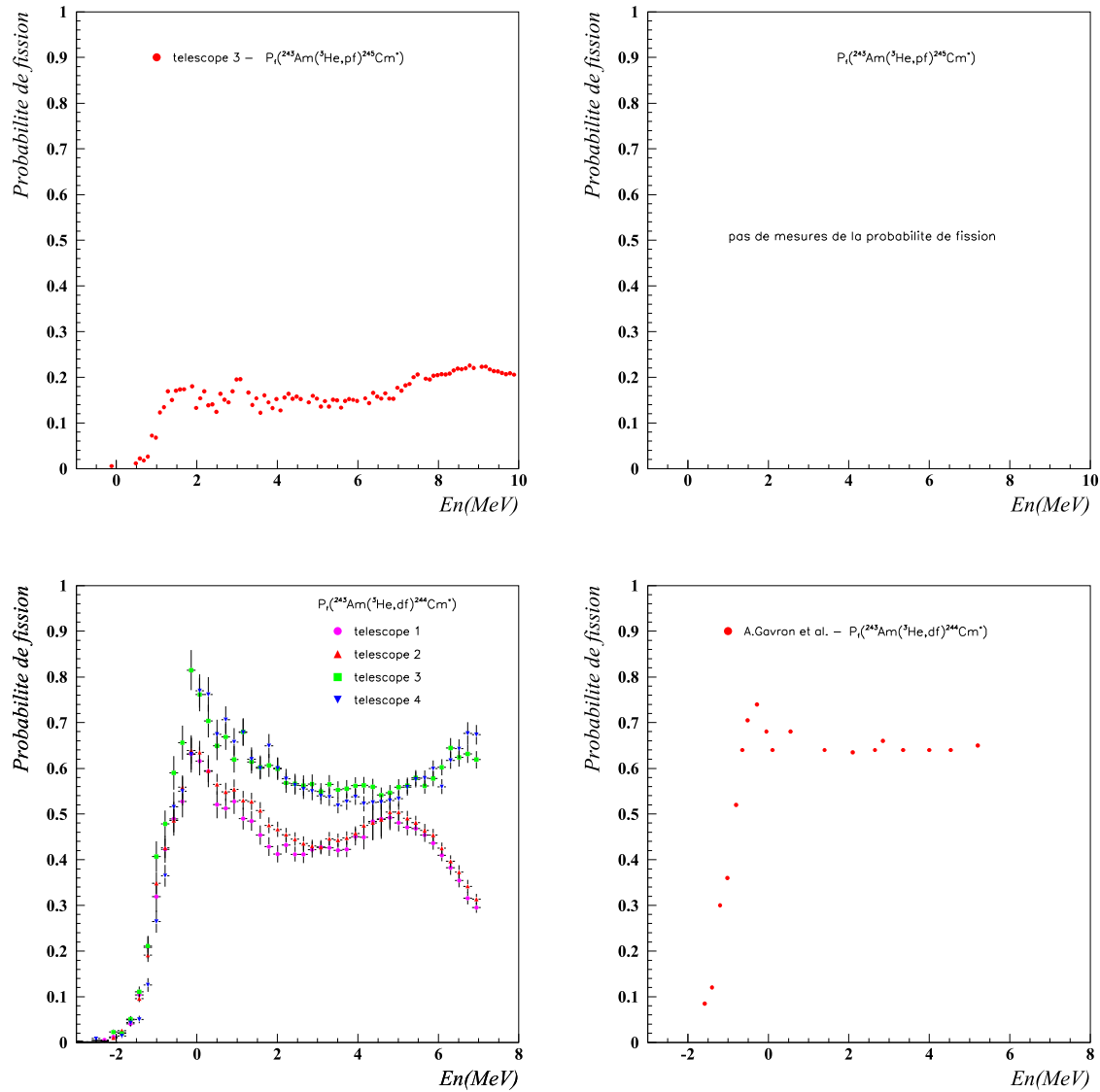


FIG. 4.15 – Probabilités de fission obtenues dans les voies proton et deuton : à gauche, les mesures obtenues dans ce travail ; à droite les mesures de A.Gavron et al. [Ga76] (télescopes 1 et 2 à 90° ; télescopes 3 et 4 à 130°).

du projectile (break-up de ^3He) ou les réactions sur les éléments légers de la cible. Une cassure (break-up) du projectile ^3He peut générer deux protons et un neutron ou un proton et un deuton éventuellement suivi de sa cassure en un proton et un neutron. Ces processus sont envisageables mais devraient favoriser préférentiellement une émission de protons vers l'avant alors que les télescopes placés à 130° détectent un nombre anormalement élevé de protons. Ce mécanisme de break-up est difficile à retenir car nous avons pu constater que ce surnombre de protons

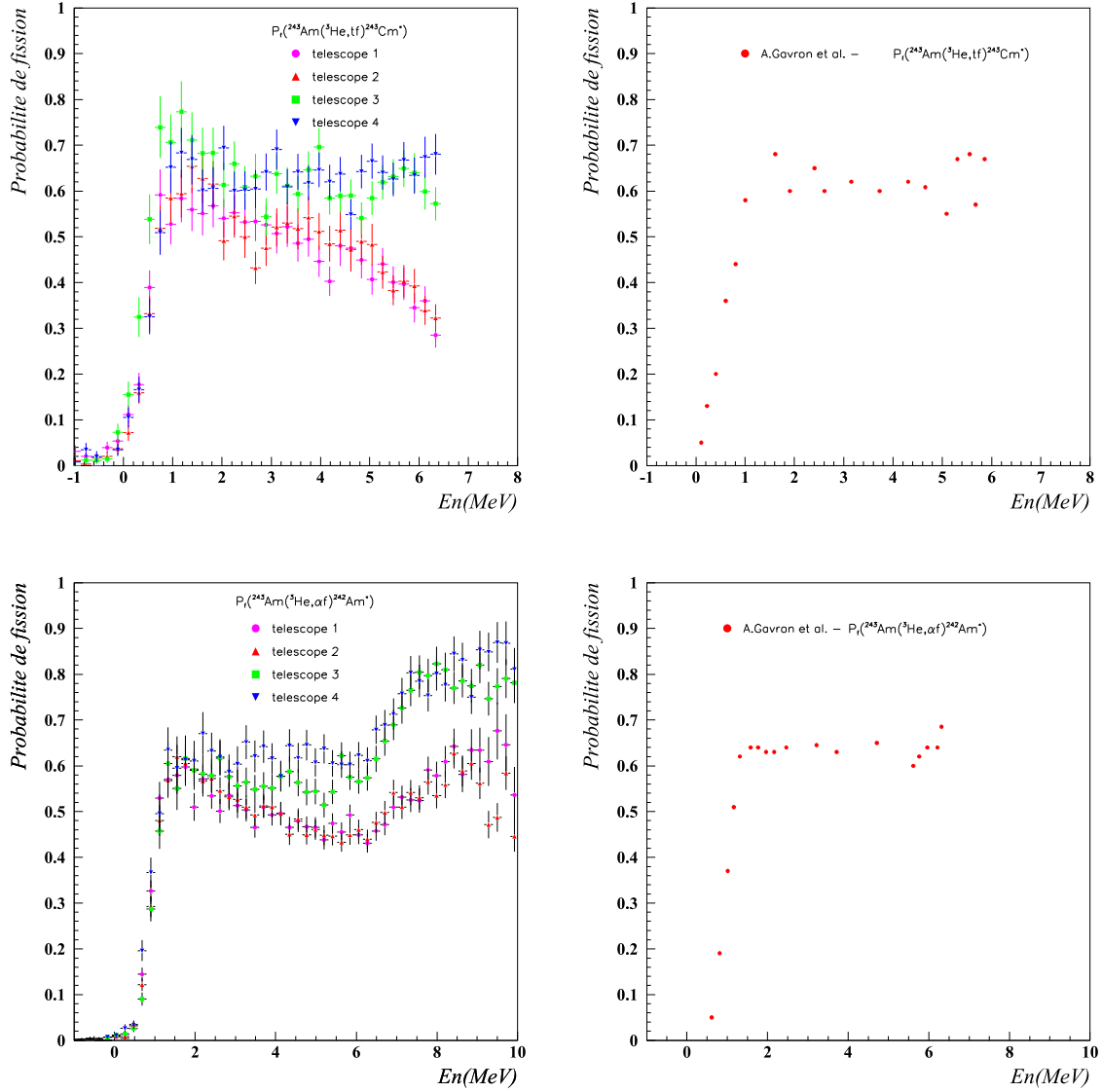


FIG. 4.16 – Probabilités de fission obtenues dans les voies triton et α : à gauche, les mesures obtenues dans ce travail ; à droite les mesures de A. Gavron et al. [Ga76] (télescopes 1 et 2 à 90° ; télescopes 3 et 4 à 130°).

persistait à différentes énergies de projectile (24, 30 et 35 MeV) et avec des particules alpha de 35 MeV d'énergie incidente. En outre, ce phénomène n'a pas été observé dans les expériences $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, p)$. Les réactions passant par un noyau composé mettent en jeu les noyaux légers ^{16}O et ^{19}F que nous avons identifiés dans le dépôt d' ^{243}Am . Par rapport au mécanisme précédent, celui-ci favorise les angles arrière de détection des particules. L'énergie du faisceau est largement supérieure à la barrière coulombienne (4,8 MeV) du système $(^3\text{He} + ^{16}\text{O})$. L'énergie d'excitation

du noyau composé formé ^{19}Ne est de 28,6 MeV. Dans la voie de sortie ($^{19}\text{F} + \text{p}$), l'énergie cinétique des protons est distribuée entre 0 et 22 MeV. Le code d'évaporation PACE-4 [Lise] a été utilisé pour évaluer la contribution de ces protons. Selon ce code, l'émission de neutrons, protons et α s'avère possible. La section efficace de fusion-évaporation est de l'ordre de 410 mb (10% pour les neutrons, 47% pour les protons et 43% pour les α). Dans les limites d'incertitudes de ce code, les taux d'émission de protons et de particules α sont équivalents. Néanmoins, les particules α les plus énergétiques sont arrêtées dans le premier étage des télescopes, ce qui n'est pas le cas des protons. Si ces protons parasites sont identifiés comme des protons de la réaction de transfert $^{243}\text{Am}(^3\text{He}, \text{p})^{245}\text{Cm}$, on doit les retrouver dans une gamme d'énergie d'excitation de 5 à 27 MeV du noyau fissionnant (^{245}Cm). Pour ces protons, le code d'évaporation prévoit une section efficace différentielle (dans le laboratoire) $\frac{d\sigma}{d\omega} = 20 \text{ mb/sr}$ autour de 90° et 130° . A ces mêmes angles, la section efficace différentielle de transfert $^{243}\text{Am}(^3\text{He}, \text{p})^{245}\text{Cm}$ est de l'ordre de quelques 10-100 $\mu\text{b/sr}$. La détection de ces protons pourrait expliquer les très faibles probabilités de fission que nous avons mesurées pour le système ^{245}Cm .

La figure (fig.4.17 & 4.18) présente les résultats finaux correspondant à la moyenne des deux télescopes placés à 130° . Pour chaque mesure moyenne, l'erreur sur la probabilité de fission combine l'erreur statistique (5 à 10%) et les erreurs systématiques (cf. annexe 5.3.2). Ces erreurs systématiques sont :

- l'efficacité de détection (erreur relative 2,2%);
- la soustraction du bruit de fond provenant du carbone;
- la correction du bruit de fond provenant de l'oxygène et du fluor).

Nous avons vu que la contribution de l'oxygène et du fluor varie avec la voie de réaction et l'énergie d'excitation. La procédure décrite ci-dessus génère dans chaque voie des corrélations qui se propagent sur toute la gamme d'énergie d'excitation. Les matrices de corrélations ont été construites (voir annexe 5.3.2) pour chaque voie. Celles-ci sont reportées sur la partie droite de la figure (fig.4.17 & 4.18). Les corrélations d'erreurs sont minimales au voisinage du seuil de fission en raison de la faible statistique et du peu de réactions parasites à basse énergie d'excitation; elles sont maximales à haute énergie d'excitation pour des raisons opposées. Pour la voie deuton correspondant au ^{244}Cm , les corrections apportées aux données augmentent avec l'énergie d'excitation. Cela se traduit par une erreur systématique de plus en plus importante qui rend les mesures du plateau de première chance non indépendantes. Cela implique que la détermination de la probabilité de fission est dépendante de la méthode utilisée.

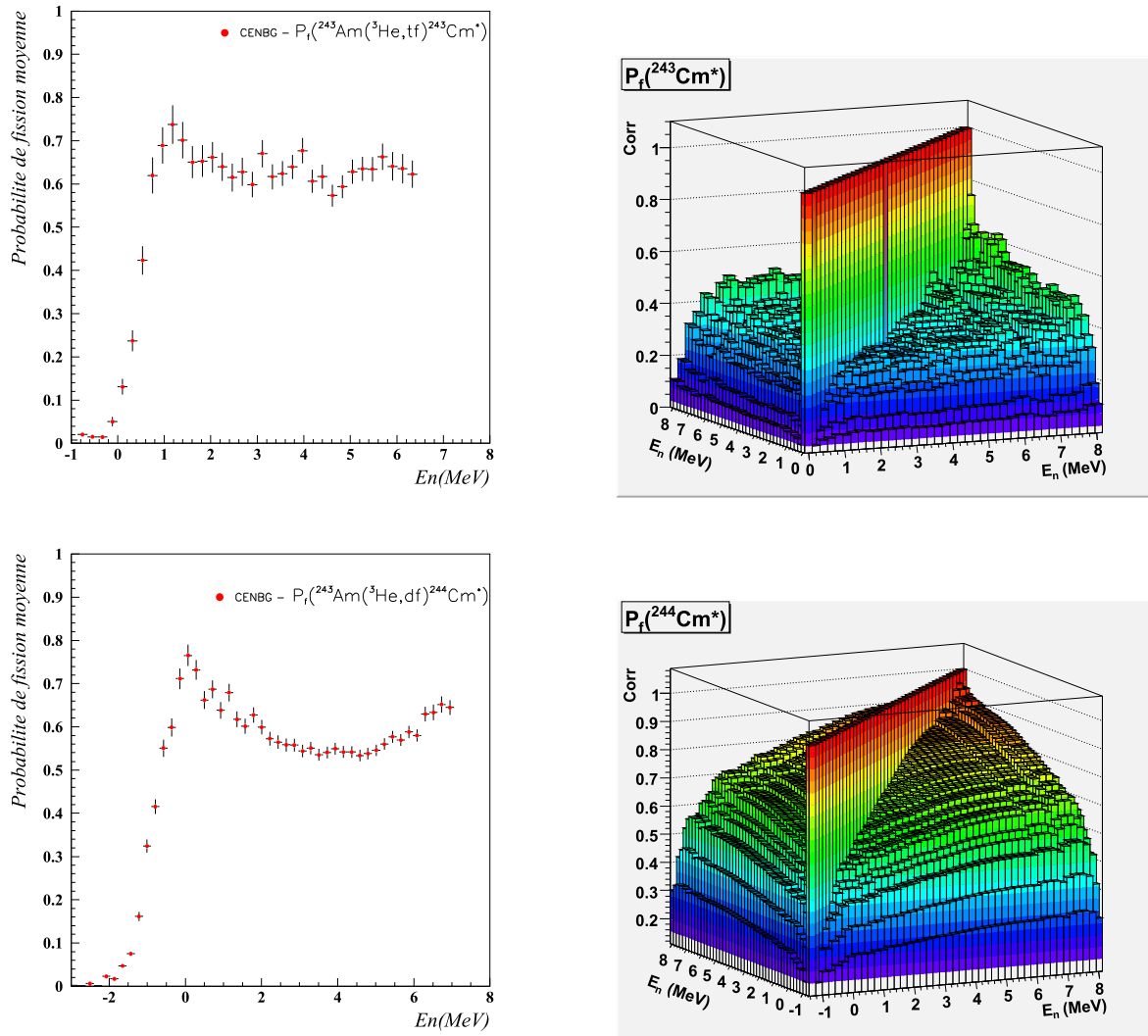


FIG. 4.17 – Les résultats sur les probabilités de fission moyennes des $^{243,244}\text{Cm}$ sont présentés avec leur matrice de corrélation d'erreurs.

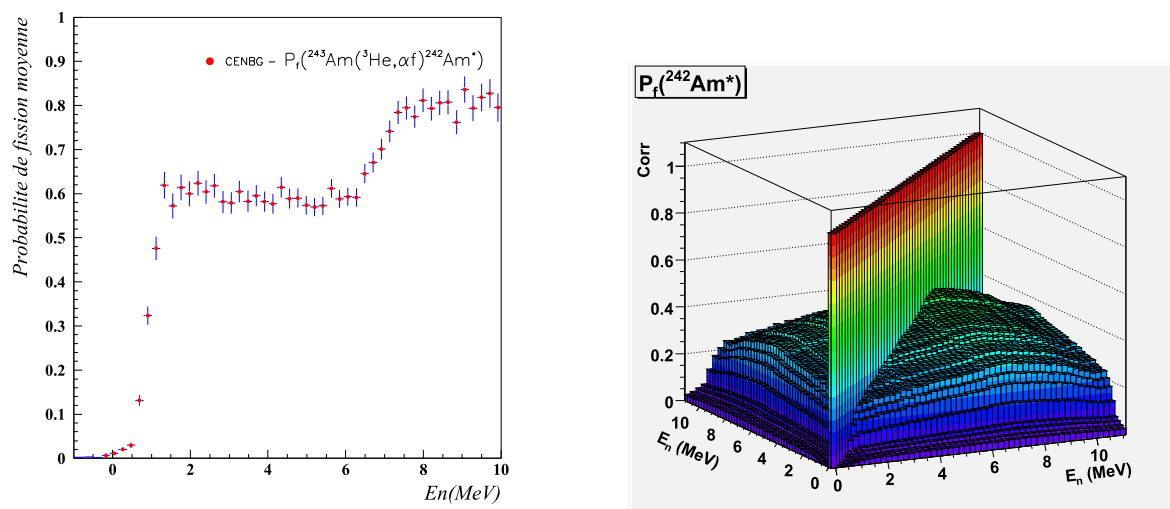


FIG. 4.18 – Les résultats sur la probabilité de fission moyenne de $^{241}\text{Am}(n, f)$ est présenté avec leur matrice de corrélation d'erreurs.

4.3.2 Détermination des sections efficaces de fission

A partir des hypothèses exposées dans le chapitre 2, ces sections efficaces de fission ont été obtenues, pour chaque voie de réaction, à partir du produit de la section efficace de formation du noyau composé $A+1$ ($\sigma_{cn}^{A+1X}(E^*)$) par sa probabilité de fission ($P_f^{A+1X}(E^*)$) :

$$\sigma_{(n,f)}^{AX}(E^*) = \sigma_{cn}^{A+1X}(E^*) \cdot P_f^{A+1X}(E^*)$$

La section efficace de formation du noyau composé $A+1$ est calculée à partir d'un modèle optique semi-microscopique développé au CEA/DAM de Bruyères-le-Châtel [Be01] (cf. §.3.6). La figure (fig.4.19(a)) présente pour la réaction ($^{241}\text{Am} + n$) l'ensemble de ces sections efficaces. Cette voie a été choisie car c'est la seule pour laquelle la section efficace totale a été mesurée entre 0,5 et 25 MeV. Dans cette gamme d'énergie, le calcul reproduit à 5% près ces mesures. Cet accord est tout à fait satisfaisant, il fixe la limite inférieure des erreurs associées aux sections efficaces déduites par cette approche. La figure (fig.4.20) présente notre détermination de la section efficace de

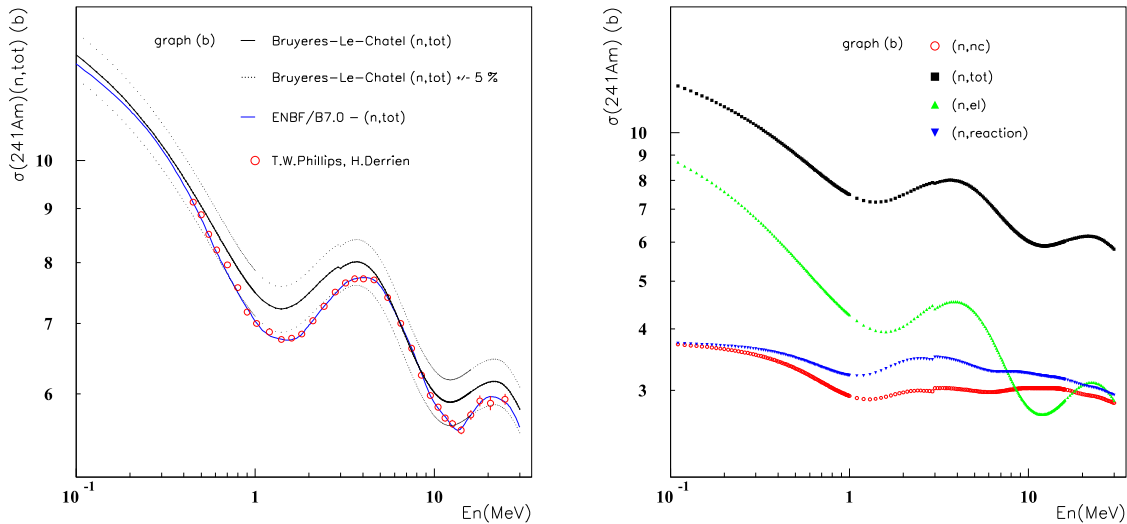


FIG. 4.19 – Graphe(a) : Comparaison des sections efficaces totales calculées aux mesures existantes. Les courbes en pointillés représentent une variation de 5% du calcul réalisé à Bruyères-Le-Châtel. Graphe(b) : sections efficaces totale, élastique, inélastique et de noyau composé de la réaction $^{241}\text{Am} + n$.

fission $^{241}\text{Am}(n, f)$. Elle est comparée aux mesures directes (par neutrons) extraites de la base de données expérimentales EXFOR. Entre 0,5 et 6 MeV (le seuil et la première chance de fission) celles-ci sont nombreuses. Globalement, nos mesures sont en excellent accord avec ces mesures mais aussi avec les données évaluées. Au-delà de 6 MeV, nos résultats sont en bon accord avec les mesures directes de Dabbs, unique donnée dans cette gamme d'énergie. Par ailleurs, les données

évaluées présentent ici des dispersions de l'ordre de $\pm 5\%$ par rapport à ces deux jeux de données. Cette voie de réaction ($^{241}\text{Am}+n$) a permis de valider notre approche et les procédures d'analyse que nous avons adoptées. C'est également la voie la moins affectée par les contaminants légers, elle permet donc de valider pour un système fissionnant impair-impair la méthode de substitution et la mesure absolue de probabilité de fission du système fissionnant ^{242}Am formé dans la réaction $^{243}\text{Am}(^3\text{He}, \alpha)^{242}\text{Am}$.

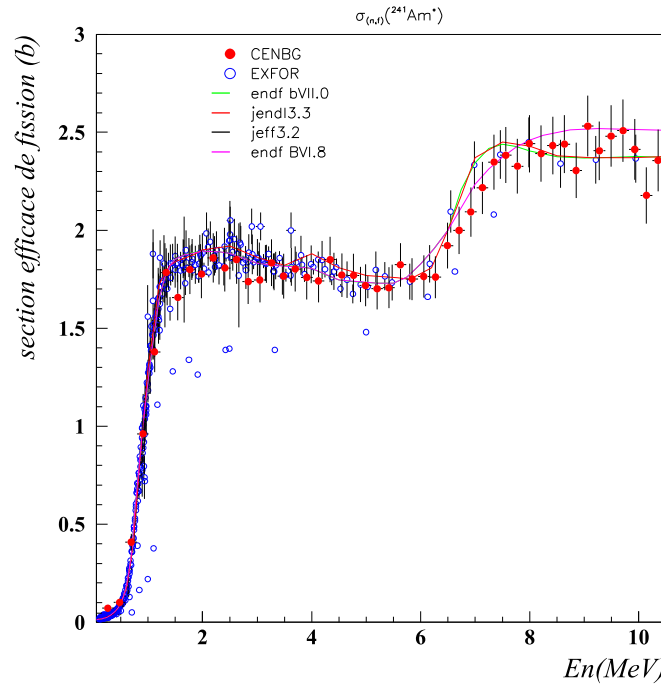


FIG. 4.20 – Section efficace de fission induite par neutrons $^{241}\text{Am}(n, f)$.

Nous allons maintenant présenter notre détermination des sections efficaces des réactions $^{242}\text{Cm}(n, f)$ et $^{243}\text{Cm}(n, f)$:

- $^{242}\text{Cm}(n, f)$: (voie $^{243}\text{Am}(^3\text{He}, tf)^{243}\text{Cm}^*$) La figure (fig.4.21) présente nos résultats et leur comparaison avec les mesures de Vorotnikov (les seules figurant dans la base EXFOR). Ces mesures se limitent au seuil de fission et à l'ouverture de la fission de première chance ($E > 1,4$ MeV). Dans cette gamme d'énergie, nous sommes en bon accord avec cette mesure directe et les données évaluées de JENDL et JEFF. En revanche, une réactualisation de la base de données (ENDF/BVII.0) s'avère indispensable : le seuil de fission apparaît à une énergie trop élevée (+0,5 MeV) ; la section efficace de fission à 1 MeV est 8 fois plus faible que celles proposées par JENDL et JEFF ou que les mesures de Vorotnikov et les nôtres.

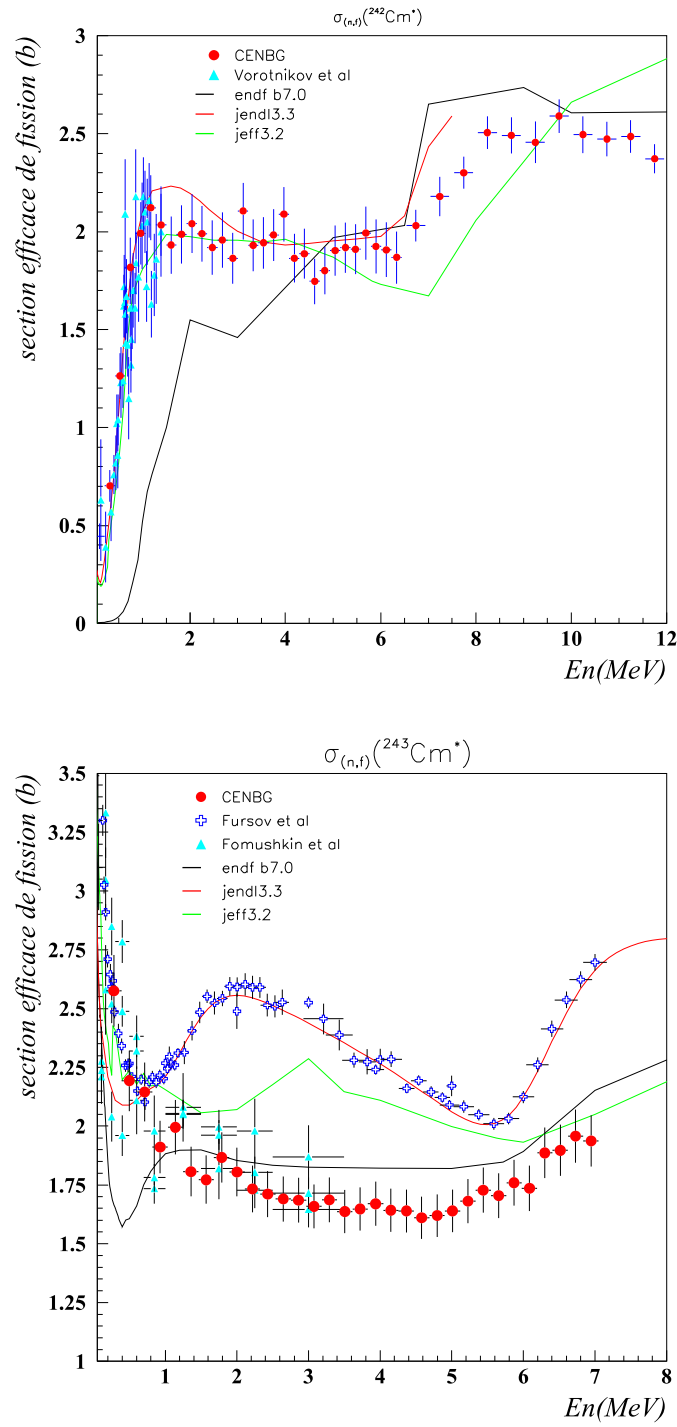


FIG. 4.21 – Sections efficaces de fission des $^{242,243}\text{Cm}$. Nos mesures sont comparées aux évaluations et données présentées au chapitre 2.

Les résultats présentés au niveau de la seconde chance de fission sont issus d'une expérience antérieure réalisée dans les mêmes conditions avec un faisceau d' ^3He de 30 MeV.

- $^{243}\text{Cm}(n, f)$: (voie $^{243}\text{Am}(^3\text{He}, df)^{244}\text{Cm}^*$) nos résultats sont présentés figure (fig.4.21). Ils sont comparés aux mesures les plus récentes effectuées par Fursov et Formushkin. En dessous de 0,7 MeV, les trois jeux de données sont globalement en bon accord. Au-delà de 0,7 MeV, nos résultats sont compatibles avec ceux de Formuskin. Ces deux jeux de données sont nettement plus faibles que celui de Fursov. A 2 MeV, la différence s'élève à 60%. Les prévisions des banques d'évaluations sont également très contrastées selon les données expérimentales retenues dans l'évaluation : JENDL reproduit les données de Fursov ; à l'inverse ENDF et JEFF, à l'appui des données de Fomushkin, prévoient une section efficace de fission du ^{243}Cm nettement plus faible que celle de Fursov, ce qui confirme nos résultats. On peut s'étonner des mesures de Fursov, surtout si on les compare aux mesures des sections efficaces de formation de deux autres isotopes fissiles du curium : $^{245}\text{Cm}(n, f)$ et $^{247}\text{Cm}(n, f)$ (fig.4.22). Dans la gamme d'énergie comprise entre 1 et 5 MeV, les sections efficaces de fission de ces deux isotopes sont inférieures ou égales à 2 barns. Cette limite est tout à fait compatible avec celle que l'on peut déduire d'une systématique des sections efficaces de formation du noyau composé (3 à 3,1 barns), des sections efficaces inélastiques composées (de 1 à 1,5 barns) ou de capture radiative ($\sim 0,2\text{ barns}$). En revanche, la section efficace de fission de 2,6 barns mesurée à 2 MeV par Fursov surestime la section efficace de la réaction $^{243}\text{Cm}(n, f)$.

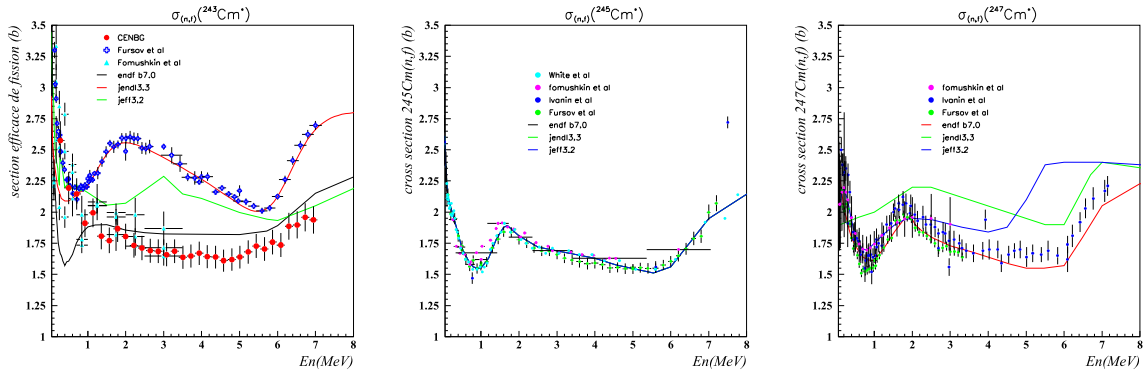


FIG. 4.22 – Sections efficaces de fission des isotopes fissiles $^{243,245,247}\text{Cm}$.

Conclusion

Dans ce travail, nous avons mesuré les probabilités absolues de fission de deux isotopes du curium ($^{243,244}\text{Cm}$) et de l' ^{242}Am . Ces probabilités de fission ont été mesurées par réactions de transfert. Les difficultés de cette technique de mesure ont été discutées. L'identification des événements parasites puis leurs élimination représentent la principale source d'erreurs systématiques entachant les mesures. Les matrices de variances-covariances ont été construites pour chaque voie de réaction.

La détermination des sections efficaces de fission est obtenue en multipliant ces probabilités de fission par les sections efficaces de formation des noyaux composés (par captures de neutrons) de même masse A et de même charge Z que les noyaux fissionnant dont nous avons mesuré les probabilités de fission. Cette méthode de substitution nous a permis de compléter les bases de données pour la réaction $^{242}\text{Cm}(n, f)$, dont seule la section efficace près du seuil avait été mesurée. Notre mesure de la réaction $^{243}\text{Cm}(n, f)$ a été comparée à deux mesures directes de cette réaction. Au-delà de 0,7MeV, nos résultats sont en bon accord avec l'une de ces mesures. L'autre mesure directe prévoit une section efficace de fission beaucoup trop élevée pour les noyaux de cette région des actinides.

Conclusion

Dans ce travail, nous nous sommes intéressés à la mesure de sections efficaces de fission de noyaux très radioactifs tels que les américiums et les curiums. Le développement et l'utilisation de techniques adaptées aux différents problèmes ont permis d'atteindre en partie nos objectifs. Dans le cadre des mesures de données nucléaires, un effort particulier a été apporté à la description des résultats : l'information est fournie par les mesures et les variances-covariances associées. Cette dernière grandeur définit le degré de liberté entre les mesures ; cette information est nécessaire pour comparer les mesures les unes aux autres et définir la moyenne de plusieurs mesures.

Dans un premier temps, nous avons étudié l' ^{243}Am dans le domaine des neutrons rapides. Pour ce noyau, il apparaît clairement que la majorité des mesures existantes ont été réalisées en référence à l' ^{235}U . La divergence des mesures nous a conduits à choisir une méthode indépendante de celles couramment utilisées pour définir la section efficace de fission. Ainsi, notre dispositif expérimental nous a permis de mesurer le flux de neutrons en référence à la diffusion élastique (n,p), réaction très bien connue dans le domaine des neutrons rapides. L'erreur sur la réaction de référence est alors minimale dans la définition des erreurs des mesures réalisées. De plus, ces mesures sont aussi totalement indépendantes des mesures disponibles dans les bibliothèques de données existantes. Dans un second temps, de nouvelles expériences ont été réalisées en référence aux réactions $^{235,238}\text{U}(n, f)$. Le bon accord de ces mesures avec les résultats en référence à la diffusion (n,p) et une partie des mesures existantes nous permettent de penser que les effets systématiques ont été correctement pris en compte. De plus, plusieurs séries de mesures ont été réalisées sur des installations différentes. Dans notre cas, la minimisation des erreurs statistiques contribue à donner de l'importance aux erreurs systématiques et, notamment, à la définition des angles solides d'irradiation et de détection. Il est alors important de propager les erreurs à l'ensemble des mesures, mais aussi, entre les mesures à travers les termes de covariances. Cette dernière quantité permet de définir l'importance des mesures et la répartition de l'information apportée dans ce travail.

Le bon accord de nos mesures avec un des deux groupes de données, nous permet de penser que l'ambiguïté sur la section efficace de fission de première chance semble résolue. Compte tenu de notre analyse, il semblerait qu'un facteur systématique soit la raison de la divergence

des données disponibles. L'ensemble des mesures de ce premier groupe a été évalué afin de prévoir les sections efficaces plus difficiles à mesurer telles que les réactions (n, γ) , (n, n') et $(n'2n)$.

Dans un second temps, nous avons déterminé les sections efficaces de fission des $^{242,243}\text{Cm}(162j, 29ans)$ et de $^{241}\text{Am}(432ans)$. Pour étudier des noyaux de courte durée de vie, nous avons développé un dispositif permettant de mesurer les probabilités de fission d'actinides induites par réactions de transfert. Cette probabilité de fission peut être assimilée à la probabilité de fission d'une réaction induite par neutrons. La section efficace de formation du noyau-composé induit par neutrons est calculée à partir d'un modèle optique semi-microscopique développé au CEA/Bruyères-le-Châtel. Avec cette méthode, il est possible de mesurer les sections efficaces de fission de noyaux très radioactifs inaccessibles par mesures directes induites par neutrons. Malheureusement, nous n'avons pas déterminé la section efficace de fission du $^{244}\text{Cm}(18ans)$ via la réaction de transfert $^{243}\text{Am}(^3\text{He}, pf)^{245}\text{Cm}$. La détermination de cette section efficace reste pour nous un objectif prioritaire. La présence d'éléments légers a conduit à un taux anormalement élevé de protons. Il s'agit ici d'un problème de fabrication de cible que nous nous efforçons de résoudre actuellement. Un moyen de contourner la présence d'oxygène serait d'utiliser une autre réaction de transfert du type $^{247}\text{Cm}(p, t)^{245}\text{Cm}$. Deux neutrons sont emportés par le triton avec une chaleur de réaction faiblement négative ($\sim -3\text{MeV}$) alors que la même réaction sur les éléments légers (^{12}C et ^{16}O) est énergétiquement moins favorable ($Q < -10\text{ MeV}$ pour ces deux noyaux). Encore faut-il disposer d'une cible de $^{247}\text{Cm}(1, 5.10^7ans)$ isotopiquement pure.

La détermination expérimentale des sections efficaces de fission des noyaux d'intérêt pour la transmutation est encore aujourd'hui nécessaire pour alimenter les bases de données et contraindre les modèles. Toutefois, il est clair que le grand nombre de mesures déterminées par le passé pour les actinides majeurs (^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu) ne pourra pas être réalisé pour les principaux actinides mineurs. Les raisons sont d'une part la radiotoxicité des éléments à étudier et d'autre part, la rareté des cibles. Dans ces mesures de fission, des cibles non-scellées de moyennes activités ont été utilisées; toutefois celles-ci sont quasiment dans les limites d'utilisation. Pour des isotopes très radioactifs, le recours aux méthodes indirectes semble inévitable. Ces méthodes reposent sur des hypothèses qui ont été validées pour la fission. L'étape ultérieure est la validation de ces mesures pour les autres voies de réaction et notamment la désexcitation par émission γ . Pour cette réaction, le travail de thèse de S.Boyer marque une première étape avec une mesure de la section efficace de capture du $^{233}\text{Pa}(27j)$ [Bo04] [Bo06]. Pour ce noyau, l'absence de mesures induites par neutrons ne permet pas encore de valider la technique. Cette validation nécessite de trouver un ou plusieurs noyaux bien connus en capture radiative induite par neutrons et les cibles appropriées pour les réactions de transfert. Une campagne de mesures concernant ces réactions de validation sera prochainement entreprise à l'IPN Orsay. La validation de cette méthode de

substitution devrait alors permettre de compléter les bases de données encore très incomplètes pour les réactions (n, γ) et $(n, 2n)$.

Chapitre 5

Annexes

Annexe 1

5.1 Radiotoxicité des principaux actinides produits

noyau	période $T_{1/2}$	activité spécifique			coefficient de dose ($10^{-7} Sv/Bq$)
		(Ci/g)	(W/g)	(Neutron $min^{-1} \cdot mg^{-1}$)	
^{237}Np	$2,14.10^6$	$7,07.10^{-4}$	$2,07.10^{-5}$	$< 7.10^{-6}$	1,1
^{238}Pu	87,404	17,2	0,570	155	2,3
^{239}Pu	$2,4413.10^4$	$6,13.10^{-2}$	$1,913.10^{-3}$	$1,35.10^{-3}$	2,5
^{240}Pu	6 580	0,227	$7,097.10^{-3}$	53,7	2,5
^{241}Pu	14,98	99,1	$4,06.10^{-3}$		4,7
^{242}Pu	$3,869.10^5$	$3,82.10^{-3}$	$1,13.10^{-4}$	95,3	2,4
^{241}Am	432,7	3,43	0,1145	$3,55.10^{-3}$	2,0
^{242m}Am	144	10,3	$3,08.10^{-2}$		1,9
^{243}Am	7 370	0,200	$6,42.10^{-2}$		2,0
^{242}Cm	0,445	$3,32.10^3$	122	$1,21.10^6$	0,13
^{244}Cm	18,099	80,94	2,832	$6,87.10^{-5}$	1,6
^{245}Cm	8 265	0,177	$5,89.10^{-3}$		3,0
^{252}Cf	2,64	537	38,3	2,3	0,98

TAB. 5.1 – Caractéristiques des principaux actinides présents dans le combustible utilisé.

Annexe 2

5.2 Erreur de la section efficace de fission moyenne de l' ^{243}Am

5.2.1 Section efficace de fission moyenne $\langle \sigma_{(n,f)} \rangle$

Dans cette annexe, nous allons détailler le calcul de la dispersion de la section efficace de fission moyenne $\langle \sigma_{(n,f)} \rangle$. En se référant au paragraphe (§3.3.3), nous pouvons reformuler la mesure de la section efficace de fission sur la l^{me} cible d' ^{243}Am de la façon suivante :

$$\sigma_{(n,f)}^l = \frac{F_l}{\phi_n} \cdot \frac{\Omega_n}{\Omega_l} \quad (5.1)$$

$$\left(\frac{\sigma_{(n,f)}^l}{\sigma_{(n,f)}^l} \right)^2 = \left(\frac{\sigma_{F_l}}{\sigma_{F_l}} \right)^2 + \left(\frac{\sigma_{\phi_n}}{\phi_n} \right)^2 + \left(\frac{\sigma_{\Omega_l}}{\Omega_l} \right)^2 + \left(\frac{\sigma_{\Omega_n}}{\Omega_n} \right)^2 - 2 \cdot \frac{\text{cov}(\Omega_l; \Omega_n)}{\Omega_l \cdot \Omega_n} \quad (5.2)$$

où

- $\sigma_{(n,f)}^l$ section efficace de fission mesurée avec la l^{me} cible ($l=1 ; 2$) ;
- F_l et ϕ_n regroupent, respectivement, l'ensemble des paramètres (précédemment énumérés) propres au taux de fission et au flux de neutrons ;
- Ω_l est l'angle solide de sous-tendu par la l^{me} cible d' ^{243}Am , position à laquelle est mesuré le taux de fission F_l ;
- Ω_n est l'angle solide de sous-tendu par le polypropylène, position à laquelle est mesuré le flux de neutrons ϕ_n ;
- $\sigma_{\sigma_{(n,f)}^l}$ est l'écart type associé à $\sigma_{(n,f)}^l$;
- σ_{F_l} est l'écart type associé à F_l ;
- σ_{ϕ_n} est l'écart type associé à ϕ_n ;
- σ_{Ω_l} est l'écart type associé à Ω_l ;
- σ_{Ω_n} est l'écart type associé à Ω_n ;
- $\text{cov}(\Omega_l; \Omega_n)$ est la covariance des angles solides Ω_l et Ω_n .

Pour mémoire, le taux de fission (F) et le flux de neutrons (ϕ_n) sont définis comme suit :

$$F = \frac{N_f}{N_{Am} \cdot \epsilon_f \cdot \epsilon_{int}} \quad (5.3)$$

$$\phi_n = \frac{N_p}{\bar{\sigma}_{(n,p)} \cdot N_H \cdot \epsilon_p^{sim}} \quad (5.4)$$

La section efficace de fission moyenne $\langle \sigma_{(n,f)} \rangle$ de m mesures est définie par les relations suivantes :

$$\langle \sigma_{(n,f)} \rangle = \frac{\langle F/\Omega \rangle}{\phi_n / \Omega_n} \quad (5.5)$$

$$\langle \sigma_{(n,f)} \rangle = \frac{\Omega_n}{\phi_n} \cdot \left(\sum_{l=1}^m \frac{F_l/\Omega_l}{(\sigma_{F_l/\Omega_l})^2} / \sum_{l=1}^m \frac{1}{(\sigma_{F_l/\Omega_l})^2} \right) \quad (5.6)$$

$$\langle \sigma_{(n,f)} \rangle = \sum_{l=1}^m \frac{\sigma_{(n,f)}^l}{(\sigma_{F_l/\Omega_l})^2} / \sum_{l=1}^m \frac{1}{(\sigma_{F_l/\Omega_l})^2} \quad (5.7)$$

$$\text{avec} \quad \left(\frac{\sigma_{F_l/\Omega_l}}{F_l/\Omega_l} \right)^2 = \frac{\text{Var}(F_l/\Omega_l)}{(F_l/\Omega_l)^2} = \left(\frac{\sigma_{F_l}}{F_l} \right)^2 + \left(\frac{\sigma_{\Omega_l}}{\Omega_l} \right)^2 \quad (5.8)$$

où la quantité $\langle F/\Omega \rangle$ est la moyenne des taux de fission normalisés (F_l/Ω_l)

5.2.2 Erreur de la moyenne du taux de fission normalisé $\langle F/\Omega \rangle$

Il nous faut maintenant calculer l'erreur sur la section efficace de fission moyenne $\langle \sigma_{(n,f)} \rangle$ en tenant compte des corrélations d'erreurs entre les angles solides $\Omega_{l=1,m}$. Dans un premier temps, nous allons exprimer l'erreur de la quantité $\langle F/\Omega \rangle$. Suivant les équations (eq.3.10) & (eq.3.11) définissant la variance d'une observable et les sensibilités associées aux paramètres, l'erreur de $\langle F/\Omega \rangle$ s'écrit :

$$\begin{aligned} \frac{\text{Var}(\langle F/\Omega \rangle)}{\langle F/\Omega \rangle^2} &= \sum_{l=1}^m (S_{\langle F/\Omega \rangle F_l})^2 \cdot \frac{\text{Var}(F_l)}{F_l^2} + (S_{\langle F/\Omega \rangle \Omega_l})^2 \cdot \frac{\text{Var}(\Omega_l)}{\Omega_l^2} \\ &\quad + 2 \sum_{0 < l < l'}^m S_{\langle F/\Omega \rangle \Omega_l} \cdot S_{\langle F/\Omega \rangle \Omega_{l'}} \cdot \frac{\text{Cov}(\Omega_l; \Omega_{l'})}{\Omega_l \cdot \Omega_{l'}} \end{aligned} \quad (5.9)$$

$$\text{avec} \quad S_{\langle F/\Omega \rangle F_l} = \frac{\text{Var}(\langle F/\Omega \rangle)}{\langle F/\Omega \rangle} / \frac{\text{Var}(F_l/\Omega_l)}{F_l/\Omega_l} \quad (5.10)$$

$$S_{\langle F/\Omega \rangle \Omega_l} = - \frac{\text{Var}(\langle F/\Omega \rangle)}{\langle F/\Omega \rangle} / \frac{\text{Var}(F_l/\Omega_l)}{F_l/\Omega_l} \quad (5.11)$$

Dans l'équation (eq.5.9), seuls les termes de covariances $Cov(\Omega_l; \Omega_j)$ entre deux angles solides sont, a priori, non nuls(cf. tab.3.6). En remplaçant les termes de sensibilité dans l'équation (eq.5.9), on obtient la relation suivante :

$$\begin{aligned} \frac{Var(< F/\Omega >)}{< F/\Omega >^2} &= \left(\frac{Var(< F/\Omega >)}{< F/\Omega >} \right)^2 \\ &\cdot \left[\sum_{l=1}^m \left(\frac{F_l/\Omega_l}{Var(F_l/\Omega_l)} \right)^2 \cdot \left(\frac{Var(F_l)}{F_l^2} + \frac{Var(\Omega_l)}{\Omega_l^2} \right) \right. \\ &\left. + 2 \sum_{0 < i < j}^m \frac{F_l/\Omega_l}{Var(F_l/\Omega_l)} \cdot \frac{F_{l'}/\Omega_{l'}}{Var(F_{l'}/\Omega_{l'})} \cdot \frac{Cov(\Omega_l; \Omega_{l'})}{\Omega_l \cdot \Omega_{l'}} \right] \quad (5.12) \end{aligned}$$

soit :

$$\begin{aligned} \frac{1}{Var(< F/\Omega >)} &= \sum_{l=1}^m \frac{1}{Var(F_l/\Omega_l)} \\ &+ 2 \sum_{0 < i < j}^m \frac{F_l/\Omega_l}{Var(F_l/\Omega_l)} \cdot \frac{F_{l'}/\Omega_{l'}}{Var(F_{l'}/\Omega_{l'})} \cdot \frac{Cov(\Omega_l; \Omega_{l'})}{\Omega_l \cdot \Omega_{l'}} \quad (5.13) \end{aligned}$$

La relation précédente (eq. 5.13) est l'expression de l'erreur de la moyenne ($Var(< F/\Omega >)$) de m mesures corrélées par les angles solides ($\Omega_{l=1,m}$). On remarquera que les termes de covariance entre les angles solides tendent à diminuer l'erreur du taux de fission normalisé moyen $< F/\Omega >$. Pour des mesures indépendantes ($Cov(\Omega_l; \Omega_{l'}) = 0 \quad \forall l, l' \in [1; m]$), on retrouve l'expression classique de la variance d'une moyenne :

$$Var(< F/\Omega >)_{non-corr} = 1 / \sum_{l=1}^m \frac{1}{Var(F_l/\Omega_l)} \quad (5.14)$$

où $Var(< F / \Omega >)_{non-corr}$ est la variance de $< F/\Omega >$ lorsque les paramètres ne sont pas corrélés. Dans le cas général, on introduit la fonction de corrélation f_c qui prend en compte la corrélation des angles solides. On obtient alors l'expression de la variance du taux de fission normalisé moyen que l'on utilisera dans la suite du calcul :

$$Var(< F/\Omega >) = Var(< F/\Omega >)_{non-corr} + f_c(Cov(\Omega_l; \Omega_{l'}); \forall l \neq l') \quad (5.15)$$

5.2.3 Erreur de la section efficace de fission moyenne $\langle \sigma_{(n,f)} \rangle$

L'erreur de la section efficace de fission moyenne $\langle \sigma_{(n,f)} \rangle$ (eq.5.5) est obtenue en utilisant les équations donnant la variance d'une observable (eq.3.10 & 3.11) :

$$\begin{aligned} \frac{Var(\langle \sigma_{(n,f)} \rangle)}{\langle \sigma_{(n,f)} \rangle^2} &= (S_{\langle \sigma_{(n,f)} \rangle \langle F/\Omega \rangle})^2 \cdot \frac{Var(\langle F/\Omega \rangle)}{\langle F/\Omega \rangle^2} + (S_{\langle \sigma_{(n,f)} \rangle \phi_n})^2 \cdot \frac{Var(\phi_n)}{\phi_n^2} \\ &+ (S_{\langle \sigma_{(n,f)} \rangle \Omega_n})^2 \cdot \frac{Var(\Omega_n)}{\Omega_n^2} \\ &+ 2 \sum_{l=1}^m S_{\langle \sigma_{(n,f)} \rangle \Omega_n} \cdot S_{\langle \sigma_{(n,f)} \rangle \Omega_l} \cdot \frac{Cov(\Omega_n; \Omega_l)}{\Omega_n \cdot \Omega_l} \end{aligned} \quad (5.16)$$

$$\text{avec } S_{\langle \sigma_{(n,f)} \rangle \langle F/\Omega \rangle} = 1 \quad (5.17)$$

$$S_{\langle \sigma_{(n,f)} \rangle \phi_n} = -1 \quad (5.18)$$

$$S_{\langle \sigma_{(n,f)} \rangle \Omega_n} = 1 \quad (5.19)$$

$$S_{\langle \sigma_{(n,f)} \rangle \Omega_l} = S_{\langle F/\Omega \rangle \Omega_l} = - \frac{Var(\langle F/\Omega \rangle)}{\langle F/\Omega \rangle} / \frac{Var(F_l/\Omega_l)}{F_l/\Omega_l} \quad (5.20)$$

soit :

$$\begin{aligned} \frac{Var(\langle \sigma_{(n,f)} \rangle)}{\langle \sigma_{(n,f)} \rangle^2} &= \frac{Var(\langle F/\Omega \rangle)}{\langle F/\Omega \rangle^2} + \frac{Var(\phi_n)}{\phi_n^2} + \frac{Var(\Omega_n)}{\Omega_n^2} \\ &- 2 \cdot \frac{Var(\langle F/\Omega \rangle)}{\langle F/\Omega \rangle} \cdot \sum_{l=1}^m \frac{F_l/\Omega_l}{Var(F_l/\Omega_l)} \frac{Cov(\Omega_n; \Omega_l)}{\Omega_n \cdot \Omega_l} \end{aligned} \quad (5.21)$$

L'équation obtenue (eq.5.21) fournit l'expression de l'erreur de la section efficace de fission moyenne. Le terme de covariance entre les angles solides Ω_1 et Ω_2 ne peut pas toujours être considéré comme une perturbation à la variance non-corrélée du taux de fission ($Var(\langle F/\Omega \rangle_{non-corr})$) (cf. eq. 5.13 & 5.14). Dans le cas général, on introduit une fonction de corrélation $f_c(Cov(\Omega_1; \Omega_2))$ afin d'exprimer l'erreur de la section efficace moyenne comme une somme de termes simples. On obtient alors la relation :

$$\begin{aligned} \frac{Var(\langle \sigma_{(n,f)} \rangle)}{\langle \sigma_{(n,f)} \rangle^2} &= \frac{Var(\langle F/\Omega \rangle_{non-corr})}{\langle F/\Omega \rangle^2} + \frac{Var(\phi_n)}{\phi_n^2} + \frac{Var(\Omega_n)}{\Omega_n^2} \\ &- 2 \cdot \frac{Var(\langle F/\Omega \rangle)}{\langle F/\Omega \rangle} \cdot \sum_{l=1}^m \frac{F_l/\Omega_l}{Var(F_l/\Omega_l)} \frac{Cov(\Omega_n; \Omega_l)}{\Omega_n \cdot \Omega_l} \\ &+ f_c(Cov(\Omega_l; \Omega_{l'}); \forall l \neq l') \end{aligned} \quad (5.22)$$

$$\text{avec } f_c(Cov(\Omega_l; \Omega_{l'}); \forall l \neq l') = \frac{Var(\langle F/\Omega \rangle)}{\langle F/\Omega \rangle^2} - \frac{Var(\langle F/\Omega \rangle_{non-corr})}{\langle F/\Omega \rangle^2} \quad (5.23)$$

Le tableau (tab.5.2) indique les erreurs du taux de fission normalisé moyen, $\langle F/\Omega \rangle$, pour deux cas limites correspondant à une corrélation d'erreur nulle ou maximale

$(\text{Corr}(\Omega_1; \Omega_2) = \frac{\text{Cov}(\Omega_1; \Omega_2)}{\sigma_{\Omega_1} \cdot \sigma_{\Omega_2}} = 0 \text{ ou } 1)$. On remarquera qu'une corrélation (>0) des angles solides tend à diminuer l'erreur sur le taux de fission normalisé moyen (tab. 5.2).

Mesures	E_n (MeV)	$\frac{\sigma_{\text{non-corr}}^{<F/\Omega>}}{<F/\Omega>}$ (%)	$\frac{\sigma_{\text{corr}}^{<F/\Omega>}}{<F/\Omega>}$ (%)	$f_c(\text{Cov}(\Omega_1; \Omega_2))$ (%) ²	$\left(\frac{\sigma_{\text{non-corr}}^{<F/\Omega>}}{<F/\Omega>}\right)_{\text{syst}}$ (%)	$\left(\frac{\sigma_{\text{corr}}^{<F/\Omega>}}{<F/\Omega>}\right)_{\text{syst}}$ (%)
$\text{Corr}(\Omega_1; \Omega_2)$	-	0	+1	-	0	+1
Série n°1	1,84	2,55	1,96	-2,65	2,55	1,96
	2,36	2,55	1,96	-2,65		
Geel	2,88	2,55	1,96	-2,65		
$T(p, n)^3\text{He}$	2,88	2,55	1,96	-2,65		
	3,39	2,55	1,96	-2,65		
Série n°2	5,12	1,88	1,54	-1,15	1,88	1,54
	5,72	1,88	1,54	-1,15	1,88	1,54
Geel	6,82 ¹	2,63	-	0,00	2,63	-
$D(d, n)^3\text{He}$	7,35	1,88	1,54	-1,15	1,88	1,54

TAB. 5.2 – Erreur sur le taux de fission normalisé $< F/\Omega >$ avec et sans corrélation (colonne 3 & 4). Les valeurs de la fonction de corrélation (f_c) (en (%)²) (colonne 5). Dans notre cas, la corrélation des angles solides Ω_1 et Ω_2 n'est pas toujours perturbative suivant les valeurs prises par le terme de covariance $\text{Cov}(\Omega_1; \Omega_2)$ (cf. eq. 5.13). Les deux dernières colonnes présentent les erreurs systématiques ² du taux de fission normalisé en fonction de la corrélation des angles solides.

* Cas limite : faibles corrélations d'erreurs des angles solides

Lorsque les termes de covariance $\text{Cov}(\Omega_i; \Omega_{i'})$ ne représentent qu'une perturbation à l'erreur non-corrélée ($\text{Var}(< F/\Omega >)_{\text{non-corr}}$), la relation (eq. 5.13) se simplifie. Dans notre cas, les taux de fission normalisés F_i/Ω_i et leur erreur associée sont du même ordre de grandeur. On a alors :

¹(tab. 5.2) - A cette énergie, nous ne disposons que d'une seule mesure (cible Am-2)

²L'erreur systématique du taux de fission normalisé ne prend pas en compte l'erreur statistique sur le taux de fission (cf. eq. 5.3) :

$$\left(\frac{\sigma_{F/\Omega}^{\text{corr}}}{F/\Omega}\right)_{\text{syst}}^2 = \frac{\text{Var}(F/\Omega)_{\text{syst}}}{(F/\Omega)^2} = \frac{\text{Var}(N_{\text{Am}})}{(N_{\text{Am}})^2} + \frac{\text{Var}(\epsilon_f)}{(\epsilon_f)^2} + \frac{\text{Var}(\epsilon_{\text{int}})}{(\epsilon_{\text{int}})^2}$$

$$si, \quad \forall l; l' \in [1; m]$$

$$F_l/\Omega_l \approx F_{l'}/\Omega_{l'} \quad \text{alors} \quad F_l/\Omega_l \approx \langle F/\Omega \rangle \quad (5.24)$$

$$Var(F_l/\Omega_l) \approx Var(F_{l'}/\Omega_{l'}) \quad \text{alors} \quad Var(\langle F/\Omega \rangle_{non-corr}) \approx \frac{Var(F_l/\Omega_l)}{m} \quad \forall i \quad (5.25)$$

$$\begin{aligned} \text{alors} \quad \frac{Var(\langle F/\Omega \rangle)}{\langle F/\Omega \rangle^2} &= 1 / \left[\sum_{l=1}^m \frac{\langle F/\Omega \rangle^2}{m \cdot Var(\langle F/\Omega \rangle_{non-corr})} \right. \\ &\quad \left. + 2 \cdot \sum_{0 < l < l'}^m \left(\frac{\langle F/\Omega \rangle^2}{m \cdot Var(\langle F/\Omega \rangle_{non-corr})} \right)^2 \cdot \frac{Cov(\Omega_l; \Omega_{l'})}{\Omega_l \cdot \Omega_{l'}} \right] \quad (5.26) \end{aligned}$$

En tenant compte des termes de covariances entre les angles solides, la variance du taux de fission normalisé est égale à la variance non corrélée à laquelle s'ajoutent les termes de covariances des angles solides pondérés par le nombre de mesures (m) au carré.

$$\frac{Var(\langle F/\Omega \rangle)}{\langle F/\Omega \rangle^2} \approx \frac{Var(\langle F/\Omega \rangle_{non-corr})}{\langle F/\Omega \rangle^2} - \frac{2}{m^2} \sum_{0 < l < l'}^m \frac{Cov(\Omega_l; \Omega_{l'})}{\Omega_l \cdot \Omega_{l'}} \quad (5.27)$$

Suivant les mêmes hypothèses (eq.5.24), la variance de la section efficace de fission moyenne (eq.5.21) est alors donnée par la relation suivante :

$$\begin{aligned} \frac{Var(\langle \sigma_{(n,f)} \rangle)}{\langle \sigma_{(n,f)} \rangle^2} &\approx \frac{Var(\langle F/\Omega \rangle_{non-corr})}{\langle F/\Omega \rangle^2} + \frac{Var(\phi_n)}{\phi_n^2} + \frac{Var(\Omega_n)}{\Omega_n^2} \\ &\quad - \frac{2}{m^2} \sum_{0 < l < l'}^m \frac{Cov(\Omega_l; \Omega_{l'})}{\Omega_l \cdot \Omega_{l'}} - \frac{2}{m} \cdot \sum_{l=1}^m \frac{Cov(\Omega_n; \Omega_l)}{\Omega_n \cdot \Omega_l} \quad (5.28) \end{aligned}$$

Dans notre cas, nous avons réalisé deux mesures du taux de fission ($F_{l=1,2}$) ; l'écart type de la section efficace moyenne est égal à :

$$\left(\frac{\sigma_{\langle \sigma_{(n,f)} \rangle}}{\langle \sigma_{(n,f)} \rangle} \right)^2 \approx \frac{Var(\langle \sigma_{(n,f)} \rangle)}{\langle \sigma_{(n,f)} \rangle^2} \quad (5.29)$$

$$\begin{aligned} \left(\frac{\sigma_{\langle \sigma_{(n,f)} \rangle}}{\langle \sigma_{(n,f)} \rangle} \right)^2 &\approx 1 / \left[\frac{\langle F/\Omega \rangle^2}{Var(F_1/\Omega_1)} + \frac{\langle F/\Omega \rangle^2}{Var(F_2/\Omega_2)} \right] \\ &\quad + \frac{Var(\phi_n)}{\phi_n^2} + \frac{Var(\Omega_n)}{\Omega_n^2} \\ &\quad - \frac{1}{2} \frac{Cov(\Omega_1; \Omega_2)}{\Omega_1 \cdot \Omega_2} - \frac{Cov(\Omega_n; \Omega_1)}{\Omega_n \cdot \Omega_1} - \frac{Cov(\Omega_n; \Omega_2)}{\Omega_n \cdot \Omega_2} \quad (5.30) \end{aligned}$$

5.3 Corrélations d'erreurs de mesures moyennes

Dans ce paragraphe, nous nous intéresserons à la covariance de deux mesures moyennes de section efficace de fission $\langle \sigma_{(n,f)} \rangle$ à deux énergies de neutrons différentes E_i et E_j parmi les n mesures réalisées. Nous utiliserons les notations suivantes :

$$\langle \sigma_{(n,f)} \rangle (E_i) = \langle \sigma \rangle_i = \frac{\langle F/\Omega \rangle_i}{\phi_n^i/\Omega_n} \quad ; \text{idem pour } E_j \quad (5.31)$$

où

- $\langle F/\Omega \rangle_i$ est le taux de fission normalisé moyen à l'énergie $E_{i=1,n}$;
- ϕ_n^i est le flux de neutrons à l'énergie $E_{i=1,n}$.

La covariance de deux observables est fonction de p' paramètres $\{a_k\}$ listés ci-dessous : $p' = 5$
 $\{a_k\}_{k=1,p'} = \{ \langle F/\Omega \rangle_i ; \phi_n^i ; \langle F/\Omega \rangle_j ; \phi_n^j ; \Omega_n \}$

où les paramètres :

- $\{ \langle F/\Omega \rangle_i ; \langle F/\Omega \rangle_j ; \phi_n^i \}$ sont deux à deux indépendants ($Cov(a_k ; a_{k'}) = 0$) ;
- $\{ \langle F/\Omega \rangle_i ; \langle F/\Omega \rangle_j ; \phi_n^j \}$ sont deux à deux indépendants ;
- $\{ \phi_n^i ; \Omega_n \}$ sont indépendants ;
- $\{ \phi_n^j ; \Omega_n \}$ sont indépendants ;
- $\{ \langle F/\Omega \rangle_i ; \langle F/\Omega \rangle_j ; \Omega_n \}$ sont deux à deux corrélés ($Cov(a_k ; a_{k'}) \neq 0$) ;
- $\{ \phi_n^i ; \phi_n^j \}$ sont corrélés.

Le tableau suivant (tab.5.3) présente les corrélations entre les différents paramètres de deux mesures de section efficace moyenne aux énergies E_i et E_j et les sensibilités associées à ces paramètres.

$a_k / a_{k'}$	$\langle F/\Omega \rangle_i$	$\langle F/\Omega \rangle_j$	ϕ_n^i	ϕ_n^j	Ω_n
$\langle F/\Omega \rangle_i$	$Var()$	$Cov()$	0	0	$Cov()$
$\langle F/\Omega \rangle_j$	$Cov()$	$Var()$	0	0	$Cov()$
ϕ_n^i	0	0	$Var()$	$Cov()$	0
ϕ_n^j	0	0	$Cov()$	$Var()$	0
Ω_n	$Cov()$	$Cov()$	0	0	$Var()$
$S_{\langle \sigma \rangle_i, k}$	1	0	-1	0	-1
$S_{\langle \sigma \rangle_j, k}$	0	1	0	-1	-1

TAB. 5.3 – Tableau de corrélations et des sensibilités des paramètres de la section efficace de fission moyenne de $l^{243}\text{Am}$.

5.3.1 Corrélations d'erreurs de mesures moyennes d'une même série

Dans un premier temps, nous allons évaluer la *covariance d'une observable à deux énergies différentes au sein d'une même série de mesures*. On peut alors écrire la relation générale de la covariance de deux mesures (eq. 3.20) :

$$\begin{aligned} \frac{Cov(<\sigma>_i; <\sigma>_j)}{<\sigma>_i \cdot <\sigma>_j} &= \sum_{k=1}^{p'} S_{ik} S_{jk} \frac{Var(a_k)}{(a_k)^2} \\ &+ \sum_{1 \leq k < k'}^{p'} \left(S_{ik} S_{jk'} + S_{ik'} S_{jk} \right) \frac{Cov(a_k; a_{k'})}{a_k \cdot a_{k'}} \end{aligned} \quad (5.32)$$

$$\text{avec } \{a_k\}_{k=1, p'} = \{<F/\Omega>_i; \phi_n^i; <F/\Omega>_j; \phi_n^j; \Omega_n\} \quad (5.33)$$

$$S_{<\sigma>_i <F/\Omega>_i} = 1 \ \& \ S_{<\sigma>_i <F/\Omega>_j} = 0 \quad \forall i, j \quad (5.34)$$

$$S_{<\sigma>_i \phi_n^i} = -1 \ \& \ S_{<\sigma>_i \phi_n^j} = 0 \quad \forall i, j \in [1, n] \quad (5.35)$$

$$S_{<\sigma>_i \Omega_n} = 1 \quad \forall i \in [1, n] \quad (5.36)$$

La covariance de deux mesures moyennes est donnée par la relation suivante (cf.tab.5.3) :

$$\begin{aligned} \frac{Cov(<\sigma>_i; <\sigma>_j)}{<\sigma>_i \cdot <\sigma>_j} &= \frac{Var(\Omega_n)}{(\Omega_n)^2} + \frac{Cov(\phi_n^i; \phi_n^j)}{\phi_n^i \cdot \phi_n^j} + \frac{Cov(<F/\Omega>_i; <F/\Omega>_j)}{<F/\Omega>_i \cdot <F/\Omega>_j} \\ &+ \frac{Cov(<F/\Omega>_i; \Omega_n)}{<F/\Omega>_i \cdot \Omega_n} + \frac{Cov(<F/\Omega>_j; \Omega_n)}{<F/\Omega>_j \cdot \Omega_n} \end{aligned} \quad (5.37)$$

On remarque que la covariance de deux mesures est la somme de la variance de l'angle solide sous-tendu par le détecteur neutrons (Ω_n) et des covariances entre les flux de neutrons, les taux de fission et l'angle solide (Ω_n) aux deux énergies E_i et E_j . Le premier terme est directement donné par le tableau des paramètres (tab.3.4). Nous allons discuter des différents termes de covariances :

– **Covariance des flux de neutrons** $Cov(\phi_n^i; \phi_n^j)$

Dans le paragraphe (§3.3.3), nous avons discuté de l'indépendance des différents termes présents dans la section efficace de fission (tab.3.6). Nous pouvons alors écrire la covariance des flux comme la somme des variances des paramètres communs aux deux énergies (cf. eq. 3.20 & 5.4) :

$$\frac{Cov(\phi_n^i; \phi_n^j)}{\phi_n^i \cdot \phi_n^j} = \frac{\overline{\sigma_{(n,p)}}}{(\overline{\sigma_{(n,p)}})^2} + \frac{N_H}{(N_H)^2} + \frac{\epsilon_p^{sim}}{(\epsilon_p^{sim})^2} \quad (5.38)$$

On montre alors que la covariance est le produit des erreurs systématiques des flux de neutrons (σ_ϕ^{syst}) aux deux énergies E_i et E_j (cf. §3.3.6) :

$$\frac{Cov(\phi_n^i; \phi_n^j)}{\phi_n^i \cdot \phi_n^j} = \frac{Var(\phi)_{syst}}{\phi_i \cdot \phi_j} = \frac{(\sigma_\phi^{syst})^2}{\phi_i \cdot \phi_j} \quad (5.39)$$

– **Covariance des taux de fission et de l'angle solide du détecteur de neutrons**
 $Cov(< F/\Omega >_i; \Omega_n)$

D'après l'équation (eq. 3.20), il est possible d'écrire :

$$\frac{Cov(< F/\Omega >_i; \Omega_n)}{< F/\Omega >_i \cdot \Omega_n} = \sum_{l=1}^m (S_{< F/\Omega >_i \Omega_l} S_{\Omega_n \Omega_l} + S_{\Omega_n \Omega_l} S_{< F/\Omega >_i \Omega_n}) \cdot \frac{Cov(\Omega_n; \Omega_l)}{\Omega_n \cdot \Omega_l} \quad (5.40)$$

$$avec \quad S_{\Omega_n \Omega_n} = 1 \quad (5.41)$$

$$\forall l \in [1; m]; \forall i; \quad S_{< F/\Omega >_i \Omega_l} = - \left(\frac{Var(< F/\Omega >)}{< F/\Omega >} \right)_i / \left(\frac{Var(F_l/\Omega_l)}{F_l/\Omega_l} \right)_i \quad (5.42)$$

$$\frac{Cov(< F/\Omega >_i; \Omega_n)}{< F/\Omega >_i \cdot \Omega_n} = - \alpha_i \cdot \sum_{l=1}^m \left(\frac{F_l/\Omega_l}{Var(F_l/\Omega_l)} \right)_i \cdot \frac{Cov(\Omega_n; \Omega_l)}{\Omega_n \cdot \Omega_l} \quad (5.43)$$

$$avec \quad \alpha_i = \left(\frac{Var(< F/\Omega >)_{non-corr}}{< F/\Omega >} \right)_i$$

avec m le nombre de mesures du taux de fission ($F_{l=1;m}$) et $\forall i \in [1, n]$.

– **Covariance des taux de fission normalisés** $Cov(< F/\Omega >_i; < F/\Omega >_j)$

Les taux de fission normalisés à deux énergies différentes sont liés par les paramètres systématiques et la corrélation des angles solides des cibles d'américium ($\Omega_{l=1;m}$). Le tableau suivant (tab.5.4) indique les corrélations entre les paramètres à deux énergies différentes (E_i et E_j) pour deux mesures différentes (l et l').

$Cov(a_k; a_{k'})$	F_{li}	F_{lj}	$F_{l'i}$	$F_{l'j}$	Ω_l	$\Omega_{l'}$
F_{li}	$Var()$	$Cov()$	0	0	0	0
F_{lj}	$Cov()$	$Var()$	0	0	0	0
$F_{l'i}$	0	0	$Var()$	$Cov()$	0	0
$F_{l'j}$	0	0	$Cov()$	$Var()$	0	0
Ω_l	0	0	0	0	$Var()$	$Cov()$
$\Omega_{l'}$	0	0	0	0	$Cov()$	$Var()$

TAB. 5.4 – Matrices de covariances des paramètres des taux de fission normalisés $\langle F/\Omega \rangle_i$ et $\langle F/\Omega \rangle_j$.

On remarque alors que les deux mesures moyennes sont corrélées de la façon suivante :

- deux taux de fission différents (F_l et $F_{l'}$) sont indépendants quelles que soient les énergies des neutrons (E_i ou E_j), mais au sein d'un même taux (F_l ou $F_{l'}$), les mesures à deux énergies différentes sont corrélées ;
- les angles solides des cibles d'américium de chaque mesure (Ω_l et $\Omega_{l'}$) sont corrélés entre eux quelles que soient l'énergie des neutrons.

On peut donc écrire la covariance des taux de fission moyens par la relation¹ :

$$\begin{aligned}
\frac{Cov(\langle F/\Omega \rangle_i; \langle F/\Omega \rangle_j)}{\langle F/\Omega \rangle_i \cdot \langle F/\Omega \rangle_j} &= \sum_{l=1}^m \sum_{k=1}^{p'} S_{\langle F/\Omega \rangle_{ikl}} \cdot S_{\langle F/\Omega \rangle_{jkl}} \cdot \frac{Var(a_{kl})}{(a_{kl})^2} \\
&+ \sum_{l=1}^m \sum_{0 < k < k'}^{p'} (S_{\langle F/\Omega \rangle_{ikl}} S_{\langle F/\Omega \rangle_{jk'l}} + S_{\langle F/\Omega \rangle_{ik'l}} S_{\langle F/\Omega \rangle_{jkl}}) \cdot \frac{Cov(a_{kl}; a_{k'l})}{a_{kl} \cdot a_{k'l}} \\
&+ 2 \sum_{0 < l < l'}^m \sum_k^{p'} S_{\langle F/\Omega \rangle_{ikl}} S_{\langle F/\Omega \rangle_{jk'l}} \cdot \frac{Cov(a_{kl}; a_{k'l'})}{a_{kl} \cdot a_{k'l'}} \\
&+ 2 \sum_{0 < l < l'}^m \sum_{0 < k < k'}^{p'} (S_{\langle F/\Omega \rangle_{ikl}} S_{\langle F/\Omega \rangle_{jk'l'}} + S_{\langle F/\Omega \rangle_{ik'l'}} S_{\langle F/\Omega \rangle_{jkl}}) \cdot \frac{Cov(a_{kl}; a_{k'l'})}{a_{kl} \cdot a_{k'l'}} \\
\text{avec } |S_{\langle F/\Omega \rangle_{ikl}}| &= \left(\frac{Var(\langle F/\Omega \rangle)}{\langle F/\Omega \rangle} \right)_i / \left(\frac{Var(F_l/\Omega_l)}{F_l/\Omega_l} \right)_i \quad \forall i; k; l \quad (5.44)
\end{aligned}$$

et $\{a_{kl}\}$ est l'ensemble des paramètres des deux énergies E_i et E_j du l^{ieme} taux de fission normalisé (F_l/Ω_l) :

$$\begin{aligned}
\{a_{kl}\}_{p'} &= \{N_f^l; N_{am}^l; \epsilon_f^l; \epsilon_{int}^l; \Omega_l\}_i \cup \{N_f^l; N_{am}^l; \epsilon_f^l; \epsilon_{int}^l; \Omega_l\}_j; \quad 1 \in [1; m] \\
\text{et } p' &= 10.
\end{aligned}$$

¹Si l'on somme le nombre de termes de variances et de covariances, on obtient :
 $N_{terme} = m \cdot p' + m \cdot 2 \cdot \frac{p'(p'-1)}{2} + 2 \cdot \frac{m(m-1)}{2} \cdot p' + 2 \cdot \frac{m(m-1)}{2} \cdot 2 \cdot \frac{p'(p'-1)}{2} = (m \cdot p')^2$; ce nombre correspond bien aux $m \cdot p'$ termes de variances et $m \cdot p' \cdot (m \cdot p' - 1)$ termes de covariances.

Si l'on ne garde que les termes de covariances non nuls a priori (tab.3.4) et que l'on introduit la fonction de corrélations des angles solides f_c (eq.5.13 & 5.23), on obtient le résultat suivant² :

$$\begin{aligned} \frac{Cov(< F/\Omega >_i; < F/\Omega >_j)}{< F/\Omega >_i \cdot < F/\Omega >_j} = & \alpha_i \cdot \alpha_j \cdot \sum_{l=1}^m \left(\frac{F_l/\Omega_l}{Var(F_l/\Omega_l)} \right)_i \cdot \left(\frac{F_l/\Omega_l}{Var(F_l/\Omega_l)} \right)_j \cdot \sum_{k=1}^{p_c} \frac{Var(a_{kl})}{(a_{kl})^2} \\ & + 2 \cdot f_c(Cov(\Omega_l; \Omega_{l'}); \forall l \neq l' \in [1; m]) \end{aligned} \quad (5.45)$$

$$avec \quad \alpha_i = \left(\frac{Var(< F/\Omega >)_{non-corr}}{< F/\Omega >} \right)_i \quad \forall i$$

et les paramètres communs aux deux mesures $\{a_{kl}\}_{p_c} = \{N_{am}^l; \epsilon_f^l; \epsilon_{int}^l; \Omega_l\}; 1 \in [1; m]$ et $p_c = 4$

On remarque alors que :

$$\sum_{k=1}^{p_c} \frac{Var(a_{kl})}{(a_{kl})^2} = \left(\frac{Var(F_l/\Omega_l)}{(F_l/\Omega_l)^2} \right)_{syst}; \quad (5.46)$$

la relation (eq. 5.45) se simplifie pour obtenir :

$$\begin{aligned} \frac{Cov(< F/\Omega >_i; < F/\Omega >_j)}{< F/\Omega >_i \cdot < F/\Omega >_j} = & \alpha_i \cdot \alpha_j \\ & \cdot \sum_{l=1}^m \left(\frac{F_l/\Omega_l}{Var(F_l/\Omega_l)} \right)_i \cdot \left(\frac{F_l/\Omega_l}{Var(F_l/\Omega_l)} \right)_j \cdot \left(\frac{Var(F_l/\Omega_l)}{Var(F_l/\Omega_l)^2} \right)_{syst} \\ & + 2 \cdot f_c(Cov(\Omega_l; \Omega_{l'}); \forall l \neq l' \in [1; m]) \end{aligned} \quad (5.47)$$

En redistribuant les termes de covariances dans l'équation (eq. 5.37), on peut réécrire la covariance de deux mesures moyennes comme la somme des variances des paramètres systématiques

²Dans notre cas, $S_{<F/\Omega>_i\Omega_l} = S_{<F/\Omega>_j\Omega_l}, \forall l$; on retrouve alors le second terme de l'équation (eq.5.12) défini comme fonction de corrélations f_c des angles solides des cibles d'américium $\Omega_{l=1,m}$ (eq. 5.23).

des deux mesures et des covariances des paramètres pondérés par le poids de chaque mesure :

$$\begin{aligned}
\frac{Cov(<\sigma>_i; <\sigma>_j)}{<\sigma>_i \cdot <\sigma>_j} &= \frac{Var(\Omega_n)}{(\Omega_n)^2} + \frac{Var(\phi)_{syst}}{\phi_i \cdot \phi_j} \\
&+ \alpha_i \cdot \alpha_j \cdot \sum_{l=1}^m \left(\frac{F_l/\Omega_l}{Var(F_l/\Omega_l)} \right)_i \cdot \left(\frac{F_l/\Omega_l}{Var(F_l/\Omega_l)} \right)_j \cdot \left(\frac{Var(F_l/\Omega_l)}{Var(F_l/\Omega_l)^2} \right)_{syst} \\
&- \alpha_i \cdot \sum_{l=1}^m \left(\frac{F_l/\Omega_l}{Var(F_l/\Omega_l)} \right)_i \cdot \frac{Cov(\Omega_n; \Omega_l)}{\Omega_n \cdot \Omega_l} \\
&- \alpha_j \cdot \sum_{l=1}^m \left(\frac{F_l/\Omega_l}{Var(F_l/\Omega_l)} \right)_j \cdot \frac{Cov(\Omega_n; \Omega_l)}{\Omega_n \cdot \Omega_l} \\
&+ 2 \cdot f_c(Cov(\Omega_l; \Omega_{l'}); \forall l \neq l' \in [1; m])
\end{aligned} \tag{5.48}$$

$$avec \quad \alpha_i = \left(\frac{Var(<F/\Omega>)_{non-corr}}{<F/\Omega>} \right)_i \quad \forall i \in [1, n]$$

L'équation (eq. 5.48) est la covariance de *deux mesures moyennes d'une même série*. Pour des taux de fission similaires et des erreurs voisines, on peut alors simplifier la relation précédente :

$$\begin{aligned}
&si \quad \forall i \in [1; n], \quad \forall l, l' \in [1; m], \\
&\left(F_l/\Omega_l \right)_i \approx \left(F_{l'}/\Omega_{l'} \right)_i \quad et \quad \left(Var(F_l/\Omega_l) \right)_i \approx \left(Var(F_{l'}/\Omega_{l'}) \right)_i \\
&alors \\
&\left(F_l/\Omega_l \right)_i \approx <F/\Omega>_i \quad et \quad \left(Var(<F/\Omega>)_{non-corr} \right)_i \approx \left(\frac{Var(F_l/\Omega_l)}{m} \right)_i
\end{aligned} \tag{5.49}$$

et

$$\begin{aligned}
\frac{Cov(<\sigma>_i; <\sigma>_j)}{<\sigma>_i \cdot <\sigma>_j} &\approx \frac{Var(\Omega_n)}{(\Omega_n)^2} + \frac{Var(\phi)_{syst}}{\phi_i \cdot \phi_j} \\
&+ \left(\frac{Var(<F/\Omega>)_{non-corr}}{<F/\Omega>^2} \right)_{syst} \\
&- \frac{2}{m} \cdot \sum_{l=1}^m \frac{Cov(\Omega_n; \Omega_l)}{\Omega_n \cdot \Omega_l} \\
&+ 2 \cdot f_c(Cov(\Omega_l; \Omega_{l'}); \forall l \neq l' \in [1; m])
\end{aligned} \tag{5.50}$$

où n est le nombre de mesures de section efficace de fission mesurée aux énergies $E_{i=1,n}$ et m le

nombre de mesures du taux de fission $F_{l=1,m}$ à une énergie donnée.

Nous disposons de deux mesures du taux de fission ($m=2$) ; on peut alors écrire la covariance de deux mesures moyennes d'une même série :

$$\begin{aligned} \frac{Cov(<\sigma>_i; <\sigma>_j)}{<\sigma>_i \cdot <\sigma>_j} &\approx \frac{Var(\Omega_n)}{(\Omega_n)^2} + \frac{Var(\phi)_{syst}}{\phi_i \cdot \phi_j} + \left(\frac{Var(<F/\Omega>)_{non-corr}}{<F/\Omega>^2} \right)_{syst} \\ &- \frac{Cov(\Omega_n; \Omega_1)}{\Omega_n \cdot \Omega_1} - \frac{Cov(\Omega_n; \Omega_2)}{\Omega_n \cdot \Omega_2} + 2 \cdot f_c(Cov(\Omega_1; \Omega_2)) \end{aligned} \quad (5.51)$$

5.3.2 Corrélations d'erreurs de mesures moyennes de deux séries différentes

Pour *deux mesures appartenant à deux séries différentes*, les angles solides des cibles d'américium ($\Omega_{i=1,2}$) et du détecteur de neutrons (Ω_n) sont différents. L'erreur et les covariances de ces quantités n'interviennent pas dans l'expression de la covariance de deux mesures moyennes. On peut donc simplifier l'équation (eq. 5.48) :

$$\begin{aligned} \frac{Cov(<\sigma>_i; <\sigma>_j)}{<\sigma>_i \cdot <\sigma>_j} &= \frac{Var(\phi)_{syst}}{\phi_i \cdot \phi_j} \\ &+ \alpha_i \cdot \alpha_j \cdot \sum_{l=1}^m \left(\frac{F_l/\Omega_l}{Var(F_l/\Omega_l)} \right)_i \cdot \left(\frac{F_l/\Omega_l}{Var(F_l/\Omega_l)} \right)_j \cdot \sum_{k=1}^{p_c} \frac{Var(a_{kl})}{(a_{kl})^2} \\ \text{avec } \alpha_i &= \left(\frac{Var(<F/\Omega>)_{non-corr}}{<F/\Omega>} \right)_i \quad \forall i \in [1, n] \end{aligned} \quad (5.52)$$

et les paramètres communs aux deux mesures $\{a_{kl}\}_{p_c} = \{ N_{am}^l; \epsilon_f^l; \epsilon_{int}^l; \}; l \in [1; m]$ et $p_c = 3 \times m$

Dans *l'approximation précédente* (eq. 5.49), on obtient la relation suivante :

$$\frac{Cov(<\sigma>_i; <\sigma>_j)}{<\sigma>_i \cdot <\sigma>_j} \approx \frac{Var(\phi)_{syst}}{\phi_i \cdot \phi_j} + \frac{Var(<F>)_{syst}}{<F>^2} \quad (5.53)$$

La covariance de $<\sigma>_i$ et $<\sigma>_j$ est alors la somme quadratique de l'erreur systématique de la mesure du flux de neutrons à laquelle s'ajoute l'erreur systématique de la moyenne des taux de fission $<F>$.

Annexe 3

5.4 Analyse des erreurs des probabilités de fission des $^{243,244}\text{Cm}$

Nous rappelons que pour chacune des voies de réaction, en tenant compte de toutes les corrections, la probabilité absolue de fission s'exprime à partir de la relation suivante (cf.§4.2.2) :

$$P_f^x(E^*) = \frac{N_f^x}{N_v^x \cdot \epsilon_f^x} (x, E^*) \quad (5.54)$$

$$\text{avec } N_v^x(E^*) = (N_{part}^x - f_{norm} \cdot N_{bdf}^x - N_{cont}^x) (E^*) \quad (5.55)$$

où

- x est la nature de la particule détectée : p, d, t, ou α correspondant respectivement aux noyaux de $^{245}\text{Cm}^*$, $^{244}\text{Cm}^*$, $^{243}\text{Cm}^*$ et $^{242}\text{Am}^*$ formés.
- $N_{part}^x(E^*)$ est le nombre de particules x détectées en fonction de l'énergie d'excitation avec la cible d' $^{243}\text{Am}^*$;
- $N_{bdf}^x(E^*)$ est le nombre de particules x détectées en fonction de l'énergie d'excitation pour une mesure de bruit de fond avec un support de carbone vierge ;
- f_{norm} est le facteur de normalisation des spectres de bruit de fond, obtenu par la mesure de la charge en ^3He déposée dans une cage de Faraday en aval du dispositif expérimental ;
- N_{cont}^x représente les événements éliminés correspondant aux réactions sur les éléments légers (contaminants) dans la voie x.

Dans les parties suivantes, nous détaillerons le calcul des erreurs associées à chaque mesure de probabilité, puis celles associées à la probabilité de fission moyenne. A chaque étape, les corrections d'efficacité de détection des fragments de fission et des contaminants rendent les mesures non-indépendantes. Il est alors intéressant de représenter la matrice de corrélation des erreurs pour visualiser la répartition de celles-ci au sein d'une série de mesures.

5.4.1 Variances-covariances d'une mesure d'une probabilité de fission

L'erreur associée à la probabilité de fission est donnée par la relation générale de la variance d'une observable (chap3, §.3.3.1, eq.3.10). Il faut prendre en compte l'erreur de chaque paramètre et les corrélations entre ces paramètres. Dans le cas présent, la probabilité est une fonction de quatre paramètres statistiques $\{N_f^x, N_{part}^x, N_{bdf}^x, N_{cont}^x\}$ et d'un paramètre systématique $\{\epsilon_f^x(E^*, < \frac{W(0^\circ)}{W(90^\circ)} >)\}$. Comme précédemment, nous avons à évaluer les liens entre les différents paramètres :

$$- \{N_f^x, N_{part}^x, N_{bdf}^x, N_{cont}^x\}$$

La détection des particules chargées légères et des fragments de fission est réalisée par deux détecteurs différents, mais non-indépendants puisque la détection des fragments de fission est relative à l'identification du noyau formé par la particule légère x . Ce lien se traduit par la présence de coïncidences fortuites qu'il faut soustraire pour obtenir les coïncidences vraies. Pour chaque voie, quel que soit le télescope, le taux de coïncidence fortuite ne dépasse pas 1% du total. Ainsi, l'erreur liée à une mauvaise identification du noyau fissionnant est négligeable. On peut alors considérer que le terme de covariance $Cov(N_f^x; N_{part}^x)$ est négligeable. Le nombre de particules liées aux réactions parasites sur les éléments légers N_{cont}^x étant une fraction (variable) de N_{part}^x , il doit exister une corrélation entre ces deux nombres. On peut alors réécrire N_{cont}^x en fonction du nombre de particules détectées N_{part}^x et le nombre de particules vraies N_v^x ainsi que l'erreur qui en dérive :

$$N_{mes}^x = N_{part}^x - f_{norm} \cdot N_{bdf}^x \quad (5.56)$$

$$\sigma_{N_{mes}^x}^2 = \sigma_{N_{part}^x}^2 + f_{norm}^2 \cdot \sigma_{N_{bdf}^x}^2 \quad (5.57)$$

$$N_v^x = N_{part}^x - f_{norm} \cdot N_{bdf}^x - N_{cont}^x \quad (5.58)$$

$$N_{cont}^x = N_{mes}^x - N_v^x \quad (5.59)$$

$$\sigma_{N_{cont}^x}^2 = \sigma_{N_{mes}^x}^2 + \sigma_{N_v^x}^2 - 2 Cov(N_{mes}^x; N_v^x) \quad (5.60)$$

où

- N_{mes}^x représente le nombre de particules après soustraction de la mesure de bruit de fond ^{12}C .
- $\sigma_{N_{mes}^x}$ est l'écart type relatif à N_{mes}^x
- N_v^x représente le nombre de particules x "vraies" résultant de la soustraction du bruit de fond ^{12}C et des réactions sur les éléments légers : $N_v^x = N_{mes}^x - N_{cont}^x$
- $\sigma_{N_{cont}^x}$ est l'écart type relatif à N_{cont}^x

Le dernier terme est alors évalué de la même façon que précédemment par la relation suivante traduisant une corrélation maximale entre ces deux grandeurs :

$$Cov(N_{mes}^x; N_v^x) = \sigma_{N_{mes}^x} \cdot \sigma_{N_v^x} \quad (5.61)$$

La mesure de bruit de fond N_{bdf}^x est réalisée avec le même film de carbone que celui utilisé pour la cible, mais la mesure est réalisée indépendamment. Le terme $Cov(N_{bdf}^x; N_{part}^x)$ est donc nul. Pour les mêmes raisons, N_{cont}^x étant une fraction variable de N_{part}^x , le terme $Cov(N_{bdf}^x; N_{cont}^x)$ est nul.

$$- \{ \epsilon_f^x(E^*, \frac{W(0^\circ)}{W(90^\circ)}) \}$$

Un dernier terme de covariance est à évaluer entre le nombre de fragments de fission détectés et l'efficacité du détecteur de fission qui dépend de l'anisotropie d'émission des fragments de fission. Nous avons vu que l'évaluation du facteur d'anisotropie dépend des taux de comptage par cellule. A priori, il existe donc un lien entre ces deux grandeurs. Toutefois, le facteur anisotropie $\left(\frac{W(0^\circ)}{W(90^\circ)}\right)_x$ utilisé dans la simulation est la moyenne des quatre mesures réalisées par chacun des télescopes. Ainsi, cette grandeur ne dépend plus directement du taux de comptage N_{ff}^x . On peut donc considérer $Cov(N_f^x, \epsilon^x(E^*, \frac{W(0^\circ)}{W(90^\circ)})) \approx 0$

L'erreur sur la probabilité de fission est donc donnée dans un premier temps par l'équation suivante :

$$\begin{aligned} \left(\frac{\sigma_{P_f^x}}{P_f^x}\right)^2 &= (S_{P_f^x, N_f^x})^2 \left(\frac{\sigma_{N_f^x}}{N_f^x}\right)^2 + (S_{P_f^x, N_{part}^x})^2 \left(\frac{\sigma_{N_{part}^x}}{N_{part}^x}\right)^2 \\ &+ (S_{P_f^x, N_{bdf}^x})^2 \left(\frac{\sigma_{N_{bdf}^x}}{N_{bdf}^x}\right)^2 + (S_{P_f^x, N_{cont}^x})^2 \left(\frac{\sigma_{N_{cont}^x}}{N_{cont}^x}\right)^2 \\ &+ (S_{P_f^x, N_f^x})^2 \left(\frac{\sigma_{N_f^x}}{N_f^x}\right)^2 + (S_{P_f^x, \epsilon_f^x})^2 \left(\frac{\sigma_{\epsilon_f^x}}{\epsilon_f^x}\right)^2 \end{aligned} \quad (5.62)$$

$$\text{avec } S_{P_f^x, N_{part}^x} = - \frac{N_{part}^x}{N_{part}^x - f_{norm} \cdot N_{bdf}^x - N_{cont}^x} \quad (5.63)$$

$$S_{P_f^x, N_{bdf}^x} = \frac{f_{norm} \cdot N_{bdf}^x}{N_{part}^x - f_{norm} \cdot N_{bdf}^x - N_{cont}^x} \quad (5.64)$$

$$S_{P_f^x, N_{cont}^x} = \frac{N_{cont}^x}{N_{part}^x - f_{norm} \cdot N_{bdf}^x - N_{cont}^x} \quad (5.65)$$

$$S_{P_f^x, N_f^x} = 1 \quad (5.66)$$

$$S_{P_f^x, \epsilon_f^x} = -1 \quad (5.67)$$

On peut alors reformuler l'erreur sur la probabilité de fission dans la voie x :

$$\left(\frac{\sigma_{P_f^x}}{P_f^x}\right)^2 = \left(\frac{N_f^x}{N_f^x}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{\epsilon_f^x}}{\epsilon_f^x}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{N_{mes}^x}}{N_v^x}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{N_{cont}^x}}{N_v^x}\right)^2 \quad (5.68)$$

$$\left(\frac{\sigma_{P_f^x}}{P_f^x}\right)^2 = \left(\frac{N_f^x}{N_f^x}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{\epsilon_f^x}}{\epsilon_f^x}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{N_v^x}}{N_v^x}\right)^2 + \frac{2 \sigma_{N_{mes}^x} (\sigma_{N_{mes}^x} - \sigma_{N_v^x})}{(N_v^x)^2} \quad (5.69)$$

L'erreur sur la probabilité de fission est donc la somme d'une erreur statistique sur la mesure $\sigma_{P_f^x}^{stat}$:

$$\left(\frac{\sigma_{P_f^x}^{stat}}{P_f^x}\right)^2 = \left(\frac{\sigma_{N_f^x}}{N_f^x}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{N_v^x}}{N_v^x}\right)^2 \quad (5.70)$$

et d'une erreur systématique $\sigma_{P_f^x}^{syst}$ qui traduit les corrections d'efficacité des détecteurs et les corrections des réactions parasites apportées aux données :

$$\left(\frac{\sigma_{P_f^x}^{syst}}{P_f^x}\right)^2 = \left(\frac{\sigma_{\epsilon_f^x}}{\epsilon_f^x}\right)^2 + \frac{2 \sigma_{N_{mes}^x} \cdot (\sigma_{N_{mes}^x} - \sigma_{N_v^x})}{(N_v^x)^2} \quad (5.71)$$

Ainsi les corrections apportées aux spectres de particules légères x ont un impact sur plusieurs points de mesures de sorte qu'elles ne puissent plus être considérées comme indépendantes. Il faut donc décrire la corrélation entre les probabilités de fission en fonction de l'énergie. Cette corrélation d'erreurs, définie dans le chapitre 3 (eq.3.49), permet donc d'écrire :

$$Corr(P_f^x(E_i); P_f^x(E_j)) = \frac{\sigma_{P_f^x}^{syst}(E_i) \cdot \sigma_{P_f^x}^{syst}(E_j)}{\sigma_{P_f^x}(E_i) \cdot \sigma_{P_f^x}(E_j)} \quad (5.72)$$

5.4.2 Variances-covariances de la mesure d'une probabilité de fission moyenne

Nous disposons de plusieurs mesures de probabilité de fission. La probabilité moyenne et son erreur sont données par les relations suivantes :

$$\langle P_f^x \rangle = \sum_{l=1}^m \frac{(P_f^x)_l}{(\sigma_{P_f^x}^{stat})_l^2} / \sum_{l=1}^m \frac{1}{(\sigma_{P_f^x}^{stat})_l^2} \quad (5.73)$$

$$Var(\langle P_f^x \rangle) = (\sigma_{\langle P_f^x \rangle})^2 = 1 / \sum_{l=1}^m \frac{1}{(\sigma_{P_f^x}^{stat})_l^2} + (\sigma_{P_f^x}^{syst})^2 \quad (5.74)$$

La matrice de covariances des mesures moyennes est obtenue en appliquant la relation générale de la covariance de deux mesures (eq. 3.20) à la probabilité de fission moyenne (eq.5.73). Le tableau suivant indique les corrélations entre les paramètres des probabilités de fission à l'énergie E_i et E_j (tab.5.5). Les sensibilités de la probabilité de fission moyenne $\langle P_f^x \rangle_i$ à l'énergie E_i à un paramètre a_k sont données par les relations suivantes :

$$S_{\langle P_f^x \rangle_i, k} = \frac{\partial \langle P_f^x \rangle_i}{\partial a_k} \cdot \frac{a_k}{\langle P_f^x \rangle_i} \quad (5.75)$$

	l-ième mesure de probabilité de fission						l'-ième mesure de probabilité de fission					
$Cov(a_k; a_{k'})$	$(N_f^x)_{il}$	$(N_f^x)_{jl}$	$(N_v^x)_{il}$	$(N_v^x)_{jl}$	$(\epsilon_f^x)_{il}$	$(\epsilon_f^x)_{jl}$	$(N_f^x)_{il'}$	$(N_f^x)_{jl'}$	$(N_v^x)_{il'}$	$(N_v^x)_{jl'}$	$(\epsilon_f^x)_{il'}$	$(\epsilon_f^x)_{jl'}$
$(N_f^x)_{il}$	$Var()$	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
$(N_f^x)_{il'}$	0	$Var()$	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
$(N_v^x)_{il}$	0	0	$Var()$	$Cov()$	0	0	0	$Cov()$	$Cov()$	$Cov()$	0	0
$(N_v^x)_{jl}$	0	0	$Cov()$	$Var()$	0	0	0	$Cov()$	$Cov()$	$Cov()$	0	0
$(\epsilon_f^x)_{il}$	0	0	0	0	$Var()$	$Cov()$	0	0	0	0	$Cov()$	$Cov()$
$(\epsilon_f^x)_{jl}$	0	0	0	0	$Cov()$	$Var()$	0	0	0	0	$Cov()$	$Cov()$
$(N_f^x)_{il'}$	0	0	0	0	0	0	$Var()$	0	0	0	0	0
$(N_f^x)_{jl'}$	0	0	0	0	0	0	0	$Var()$	0	0	0	0
$(N_v^x)_{il'}$	0	0	$Cov()$	$Cov()$	0	0	0	$Var()$	$Cov()$	$Cov()$	0	0
$(N_v^x)_{jl'}$	0	0	$Cov()$	$Cov()$	0	0	0	$Cov()$	$Cov()$	$Var()$	0	0
$(\epsilon_f^x)_{il'}$	0	0	0	0	$Cov()$	$Cov()$	0	0	0	0	$Var()$	$Cov()$
$(\epsilon_f^x)_{jl'}$	0	0	0	0	$Cov()$	$Cov()$	0	0	0	0	$Cov()$	$Var()$
$S_{<P_f^x>i,k,l}$	α_{il}	0	$-\alpha_{il}$	0	$-\alpha_{il}$	0	$\alpha_{il'}$	0	$-\alpha_{il'}$	0	$-\alpha_{il'}$	0
$S_{<P_f^x>j,k,l}$	0	α_{jl}	0	$-\alpha_{jl}$	0	$-\alpha_{jl}$	0	$\alpha_{jl'}$	0	$-\alpha_{jl'}$	0	$-\alpha_{jl'}$

TAB. 5.5 – Matrices de covariances et de sensibilités des paramètres de la probabilité de fission moyenne $<P_f^x>$.

$$\text{avec } |S_{<P_f^x>,k,l}| = \alpha_{il} = \frac{\text{Var}(<P_f^x>_i)}{<P_f^x>_i} \cdot \left(\frac{P_f^x}{\text{Var}(P_f^x)^{stat}} \right)_{i,l} \quad (5.76)$$

En utilisant la notation matricielle (cf.chap.3, §3.3.1, eq.3.13), les covariances des mesures moyennes de probabilité de fission en fonction de l'énergie, s'écrivent :

$$[Cov(<P_f^x>)] = [S_{<P_f^x>,k}]^* \cdot [Cov(a_k; a_{k'})] \cdot [S_{<P_f^x>,k}] \quad (5.77)$$

Pour les deux mesures de probabilité de fission l et l', les spectres de particules ont été analysés indépendamment. On peut alors négliger les termes de covariances suivants :

$$Cov((N_v^x)_{il}; (N_v^x)_{jl'}) \sim Cov((N_v^x)_{il}; (N_v^x)_{il'}) \sim Cov((N_v^x)_{jl}; (N_v^x)_{jl'}) \approx 0 ; l \neq l' \quad (5.78)$$

La relation (eq.5.77) donne le résultat suivant :

$$\begin{aligned} \frac{Cov(<P_f^x>_i; <P_f^x>_j)}{<P_f^x>_i \cdot <P_f^x>_j} &= \sum_{l=1}^m \alpha_{il} \cdot \alpha_{jl} \cdot \left(\frac{Cov((N_v^x)_{il}; (N_v^x)_{jl})}{(N_v^x)_{il} \cdot (N_v^x)_{jl}} + \frac{Cov((\epsilon_f^x)_{il}; (\epsilon_f^x)_{jl})}{(\epsilon_f^x)_{il} \cdot (\epsilon_f^x)_{jl}} \right) \\ &+ 2 \cdot \sum_{0 < l < l'}^m \alpha_{il} \cdot \alpha_{jl'} \cdot \frac{Cov((\epsilon_f^x)_{il}; (\epsilon_f^x)_{jl'})}{(\epsilon_f^x)_{il} \cdot (\epsilon_f^x)_{jl'}} \end{aligned} \quad (5.79)$$

Les deux premiers termes correspondent aux erreurs systématiques de chaque mesure (l) pondérées par les sensibilités. Le dernier terme correspond à la covariance des efficacités de détection des fragments entre deux séries de mesures l et l'. Dans le cas général, ce terme de covariance est borné par le produit des écarts types systématiques du détecteur de fission :

$$|Cov((\epsilon_f^x)_{il}; (\epsilon_f^x)_{jl'})| \leq (\sigma_{\epsilon_f^x})_i \cdot (\sigma_{\epsilon_f^x})_j \quad (5.80)$$

Pour deux mesures à l'énergie E_i (ou E_j), de deux séries différentes (l et l'), cohérentes entre elles et avec des erreurs voisines :

$$\begin{aligned} \text{si } \forall i, j \in [1; n], \quad \text{et } \forall l, l' \in [1; m], \\ \left(P_f^x \right)_{i,l} \approx \left(P_f^x \right)_{i,l'} \quad \text{alors} \quad \left(P_f^x \right)_{i,l} \approx <P_f^x>_i \end{aligned} \quad (5.81)$$

$$\begin{aligned} \left(\text{Var}(P_f^x)^{stat} \right)_{i,l} \approx \left(\text{Var}(P_f^x)^{stat} \right)_{i,l'} \quad \text{alors} \quad \text{Var}(<P_f^x>_i)^{stat} \approx \left(\frac{\text{Var}(P_f^x)^{stat}}{m} \right)_{i,l} \\ \text{alors } \alpha_{il} \approx \frac{1}{m} ; \end{aligned} \quad (5.82)$$

la covariance de deux mesures moyennes aux énergies E_i et E_j (eq.5.79) se simplifie pour donner :

$$si \quad \forall l, l' \in [1; m] \quad et \quad \forall i \in [1; n], \quad \epsilon_{fl}^x \approx (\epsilon_f^x)_{il} \approx \langle \epsilon_f^x \rangle_i \quad (5.83)$$

$$\frac{Cov(\langle P_f^x \rangle_i; \langle P_f^x \rangle_j)}{\langle P_f^x \rangle_i \cdot \langle P_f^x \rangle_j} \approx \frac{1}{m^2} \sum_{l=1}^m \left(\frac{Cov((P_f^x)_i; (P_f^x)_j)}{(P_f^x)_i \cdot (P_f^x)_j} \right)_l \quad (5.84)$$

$$+ \frac{m-1}{m} \cdot \frac{Cov((\epsilon_f^x)_{il}; (\epsilon_f^x)_{jl'})}{\langle \epsilon_f^x \rangle_i \cdot \langle \epsilon_f^x \rangle_j} \quad (5.85)$$

La matrice de corrélations correspond à la matrice de covariances normalisée à l'unité sur la diagonale :

$$Corr(\langle P_f^x \rangle_i; \langle P_f^x \rangle_j) = \frac{Cov(\langle P_f^x \rangle_i; \langle P_f^x \rangle_j)}{\sqrt{Var(\langle P_f^x \rangle_i) \cdot Var(\langle P_f^x \rangle_j)}} \quad (5.86)$$

Dans notre cas, l'erreur statistique est prépondérante quelle que soit la voie de réaction. On peut alors en déduire une expression simplifiée de la corrélation de deux mesures moyennes de probabilité de fission aux énergies E_i et E_j :

$$si \quad \forall i, j \in [1; n], \quad Var(\langle P_f^x \rangle_i) \approx \frac{Var(P_f^x)_{i,l}}{m} \quad (5.87)$$

alors

$$Corr(\langle P_f^x \rangle_i; \langle P_f^x \rangle_j) \approx \frac{1}{m} \sum_{l=1}^m Corr((P_f^x)_i; (P_f^x)_j)_l \quad (5.88)$$

$$+ \frac{m-1}{m} \cdot \frac{Cov((\epsilon_f^x)_{il}; (\epsilon_f^x)_{jl'})}{\langle \epsilon_f^x \rangle_i \cdot \langle \epsilon_f^x \rangle_j} \cdot \frac{\langle P_f^x \rangle_i \cdot \langle P_f^x \rangle_j}{\sqrt{Var(\langle P_f^x \rangle_i) \cdot Var(\langle P_f^x \rangle_j)}}$$

Pour les mesures où les erreurs systématiques de l'efficacité du détecteur fission sont petites par rapport aux erreurs statistiques, la relation (eq.5.89) se simplifie par l'équation suivante :

$$Corr(\langle P_f^x \rangle_i; \langle P_f^x \rangle_j) \approx \frac{1}{m} \sum_{l=1}^m Corr((P_f^x)_i; (P_f^x)_j)_l \quad (5.89)$$

On constate que la matrice de corrélations de m mesures moyennes est la moyenne des matrices de corrélations de chaque mesure de probabilité de fission.

Annexe 4

5.5 Tableau des mesures de la réaction $^{243}\text{Cm}(n, f)$

E_n (MeV)	$\sigma_{(n,f)}$ (b)	$\sigma_{\sigma_{(n,f)}}$ (%)	P_f (sans unité)	$\sigma_{P_f}^{tot}$ (%)	$\sigma_{P_f}^{stat}$ (%)	$\sigma_{P_f}^{syst}$ (%)
-1.2197	0.0000	0.0000	0.1615	6.3120	5.6192	2.8499
-1.0047	0.0000	0.0000	0.3241	4.7420	3.9030	2.6814
-0.7902	0.0000	0.0000	0.4158	4.0788	3.3228	2.3337
-0.5752	0.0000	0.0000	0.5505	3.6426	2.8323	2.2848
-0.3602	0.0000	0.0000	0.5985	3.4960	2.6271	2.2898
-0.1452	0.0000	0.0000	0.7115	3.3584	2.3585	2.3494
0.0693	3.1021	5.9388	0.7653	3.2047	2.1925	2.3370
0.2843	2.5754	5.9037	0.7316	3.1391	2.1360	2.2974
0.4993	2.1930	5.8891	0.6619	3.1115	2.1283	2.2698
0.7138	2.1448	5.8524	0.6871	3.0414	2.0113	2.2802
0.9288	1.9109	5.8475	0.6382	3.0321	1.9843	2.2921
1.1438	1.9954	5.8139	0.6791	2.9668	1.8589	2.3122
1.3583	1.8068	5.8105	0.6173	2.9600	1.8482	2.3121
1.5733	1.7725	5.7770	0.6014	2.8938	1.7912	2.2729
1.7883	1.8676	5.7362	0.6273	2.8113	1.6870	2.2472
2.0028	1.8043	5.7282	0.5995	2.7951	1.6488	2.2571
2.2178	1.7334	5.7256	0.5727	2.7897	1.6105	2.2782
2.4328	1.7108	5.7239	0.5646	2.7862	1.5548	2.3119
2.6478	1.6899	5.6998	0.5583	2.7363	1.4982	2.2896
...						

TAB. 5.6 – Résultats obtenus pour la section efficace de fission du ^{243}Cm . Le tableau fournit, suivant l'énergie des neutrons (E_n), la section efficace de fission ($\sigma_{(n,f)}$), l'erreur sur la section efficace de fission ($\sigma_{\sigma_{(n,f)}}$), la probabilité de fission du ^{244}Cm (P_f), l'erreur totale (statistique et systématique) sur la probabilité de fission ($\sigma_{P_f}^{tot}$), l'erreur statistique sur la probabilité de fission ($\sigma_{P_f}^{stat}$), l'erreur systématique sur la probabilité de fission ($\sigma_{P_f}^{syst}$). Les points correspondant à une énergie de neutrons négative sont liés à la méthode de transfert permettant de mesurer la fission sous le seuil d'énergie de liaison du neutron.

E_n (MeV)	$\sigma_{(n,f)}$ (b)	$\sigma_{\sigma_{(n,f)}}$ (%)	P_f (sans unité)	$\sigma_{P_f}^{tot}$ (%)	$\sigma_{P_f}^{stat}$ (%)	$\sigma_{P_f}^{syst}$ (%)
...						
2.8623	1.6850	5.6763	0.5578	2.6871	1.4386	2.2693
3.0773	1.6591	5.6514	0.5441	2.6342	1.3943	2.2347
3.2918	1.6864	5.6403	0.5506	2.6102	1.3322	2.2426
3.5068	1.6364	5.6326	0.5354	2.5935	1.2926	2.2457
3.7218	1.6478	5.6203	0.5406	2.5667	1.2359	2.2476
3.9368	1.6697	5.6068	0.5494	2.5370	1.1787	2.2454
4.1513	1.6423	5.6023	0.5417	2.5271	1.1380	2.2525
4.3663	1.6392	5.5962	0.5417	2.5134	1.0923	2.2613
4.5813	1.6109	5.5821	0.5335	2.4818	1.0546	2.2464
4.7958	1.6196	5.5688	0.5378	2.4518	1.0120	2.2328
5.0108	1.6396	5.5638	0.5457	2.4405	0.9876	2.2303
5.2258	1.6806	5.5639	0.5603	2.4406	0.9626	2.2427
5.4408	1.7285	5.5629	0.5770	2.4385	0.9371	2.2512
5.6553	1.7044	5.5591	0.5694	2.4297	0.9277	2.2448
5.8703	1.7598	5.5535	0.5883	2.4170	0.9118	2.2375
6.0848	1.7355	5.5589	0.5802	2.4293	0.9155	2.2468
6.2998	1.8863	5.6831	0.6297	2.7014	0.8960	2.5377
6.5148	1.8971	5.7525	0.6333	2.8445	0.9051	2.6976
6.7298	1.9577	5.7619	0.6516	2.8635	0.9083	2.6962
6.9443	1.9371	5.6275	0.6448	2.5823	0.9228	2.4054

TAB. 5.7 – Résultats obtenus pour la section efficace de fission du ^{243}Cm . Le tableau fournit, suivant l'énergie des neutrons (E_n), la section efficace de fission ($\sigma_{\sigma_{(n,f)}}$), l'erreur sur la section efficace de fission ($\sigma_{\sigma_{(n,f)}}$), la probabilité de fission du ^{244}Cm (P_f), l'erreur totale (statistique et systématique) sur la probabilité de fission ($\sigma_{P_f}^{tot}$), l'erreur statistique sur la probabilité de fission ($\sigma_{P_f}^{stat}$), l'erreur systématique sur la probabilité de fission ($\sigma_{P_f}^{syst}$). Les points correspondant à une énergie de neutrons négative sont liés à la méthode de transfert permettant de mesurer la fission sous le seuil d'énergie de liaison du neutron. (suite)

5.6 Tableau des mesures de la réaction $^{242}\text{Cm}(n, f)$

E_n (MeV)	$\sigma_{(n,f)}$ (b)	$\sigma_{\sigma_{(n,f)}}$ (%)	P_f (sans unité)	$\sigma_{P_f}^{tot}$ (%)	$\sigma_{P_f}^{stat}$ (%)	$\sigma_{P_f}^{syst}$ (%)
-0.5418	0.0000	0.0000	0.0147	0.0000	0.0000	0.0000
-0.3273	0.0000	0.0000	0.0143	0.0000	0.0000	0.0000
-0.1123	0.0000	22.1732	0.0503	21.6021	21.4442	2.5750
0.1027	0.4459	14.4924	0.1309	13.6025	13.3595	2.5184
0.3172	0.7030	11.5008	0.2372	10.3570	9.6983	3.4626
0.5322	1.2634	9.2200	0.4234	7.7466	7.0897	3.0560
0.7472	1.8170	8.3808	0.6196	6.7259	5.8780	3.1573
0.9622	1.9907	7.9597	0.6890	6.1933	5.5239	2.8078
1.1767	2.1212	7.8097	0.7374	5.9992	5.1284	3.0978
1.3917	2.0336	7.8090	0.7013	5.9983	5.0082	3.3008
1.6067	1.9311	7.5734	0.6506	5.6883	4.8765	2.9231
1.8212	1.9862	7.5076	0.6528	5.6004	4.8202	2.8308
2.0362	2.0405	7.3463	0.6616	5.3821	4.5847	2.8227
2.2512	1.9895	7.1361	0.6398	5.0916	4.3108	2.7048
2.4657	1.9180	7.2327	0.6150	5.2261	4.4172	2.7952
2.6807	1.9569	7.2088	0.6281	5.1930	4.2892	2.9260
2.8957	1.8644	6.9854	0.5988	4.8780	4.1808	2.5073
3.1102	2.1048	6.8804	0.6701	4.7265	4.0224	2.4756
3.3252	1.9294	6.8483	0.6167	4.6796	3.9872	2.4496
3.5402	1.9426	6.7755	0.6240	4.5725	3.9150	2.3566
3.7552	1.9821	6.6742	0.6395	4.4209	3.7194	2.3914
3.9697	2.0887	6.6185	0.6769	4.3364	3.5470	2.4949
4.1847	1.8643	6.7029	0.6065	4.4642	3.7103	2.4743
4.3992	1.8875	6.7431	0.6169	4.5243	3.6179	2.7099
4.6142	1.7458	6.7020	0.5731	4.4628	3.6363	2.5865
4.8292	1.8015	6.7034	0.5937	4.4649	3.5783	2.6566
5.0442	1.9028	6.7144	0.6286	4.4814	3.5979	2.6632
5.2587	1.9178	6.6729	0.6349	4.4189	3.5468	2.6340
5.4737	1.9098	6.6794	0.6337	4.4288	3.5599	2.6342
5.6887	1.9931	6.8086	0.6627	4.6214	3.5685	2.9383
5.9032	1.9241	7.1385	0.6407	5.0949	3.6832	3.5210
6.1182	1.9072	7.3412	0.6356	5.3753	3.7615	3.8158
6.3332	1.8681	7.1264	0.6224	5.0779	3.8635	3.2258

TAB. 5.8 – Résultats obtenus pour la section efficace de fission du ^{242}Cm . Le tableau fournit, suivant l'énergie des neutrons (E_n), la section efficace de fission ($\sigma_{\sigma_{(n,f)}}$), l'erreur sur la section efficace de fission ($\sigma_{\sigma_{(n,f)}}$), la probabilité de fission du ^{243}Cm (P_f), l'erreur totale (statistique et systématique) sur la probabilité de fission ($\sigma_{P_f}^{tot}$), l'erreur statistique sur la probabilité de fission ($\sigma_{P_f}^{stat}$), l'erreur systématique sur la probabilité de fission ($\sigma_{P_f}^{syst}$). Les points correspondant à une énergie de neutrons négative sont liés à la méthode de transfert permettant de mesurer la fission sous le seuil d'énergie de liaison du neutron.

5.7 Tableau des mesures de la réaction $^{241}\text{Am}(n, f)$

E_n (MeV)	$\sigma_{(n,f)}$ (b)	$\sigma_{\sigma_{(n,f)}}$ (%)	P_f (sans unité)	$\sigma_{P_f}^{tot}$ (%)	$\sigma_{P_f}^{stat}$ (%)	$\sigma_{P_f}^{syst}$ (%)
-0.1716	0.0000	5.0000	0.0070	0.0000	0.0000	0.0000
0.0434	0.0472	33.2150	0.0114	32.8365	32.7609	2.2271
0.2584	0.0706	25.5072	0.0197	25.0124	24.8872	2.3419
0.4729	0.1006	20.3828	0.0299	19.7601	19.6146	2.3483
0.6879	0.4085	10.6069	0.1313	9.3545	9.0316	2.2242
0.9029	0.9617	8.1634	0.3234	6.4530	6.0409	2.2398
1.1179	1.3801	7.4335	0.4760	5.5007	5.0293	2.2241
1.3324	1.7838	7.0099	0.6192	4.9131	4.3687	2.2451
1.5474	1.6575	7.0492	0.5720	4.9690	4.4241	2.2568
1.7624	1.7995	6.8927	0.6143	4.7444	4.1934	2.2192
1.9769	1.7756	6.8376	0.5998	4.6640	4.0986	2.2247
2.1919	1.8593	6.7724	0.6238	4.5679	3.9423	2.2909
2.4069	1.8082	6.6889	0.6040	4.4431	3.8329	2.2404
2.6214	1.8501	6.6480	0.6178	4.3814	3.7546	2.2580
2.8364	1.7386	6.5981	0.5813	4.3052	3.6894	2.2183
3.0514	1.7465	6.5544	0.5789	4.2379	3.5943	2.2395
3.2659	1.8334	6.4802	0.6047	4.1223	3.4298	2.2699
3.4809	1.7661	6.4687	0.5827	4.1042	3.4469	2.2196
3.6959	1.8028	6.4060	0.5953	4.0047	3.2922	2.2638
3.9109	1.7591	6.3717	0.5819	3.9495	3.2591	2.2233
4.1254	1.7421	6.3261	0.5771	3.8756	3.1825	2.2117
4.3404	1.8509	6.2679	0.6144	3.7798	3.0564	2.2196
4.5549	1.7711	6.2547	0.5889	3.7578	3.0209	2.2288
4.7699	1.7701	6.2374	0.5901	3.7289	2.9672	2.2413
4.9849	1.7189	6.2075	0.5739	3.6787	2.9178	2.2321
5.1999	1.7016	6.1967	0.5698	3.6604	2.8796	2.2343
5.4144	1.7075	6.1586	0.5726	3.5956	2.8274	2.2148
5.6294	1.8237	6.1058	0.6121	3.5043	2.7232	2.2053
5.8444	1.7509	6.1024	0.5881	3.4985	2.7042	2.2182
...						

TAB. 5.9 – Résultats obtenus pour la section efficace de fission du ^{241}Am . Le tableau fournit, suivant l'énergie des neutrons (E_n), la section efficace de fission ($\sigma_{\sigma_{(n,f)}}$), l'erreur sur la section efficace de fission ($\sigma_{\sigma_{(n,f)}}$), la probabilité de fission du ^{241}Am (P_f), l'erreur totale (statistique et systématique) sur la probabilité de fission ($\sigma_{P_f}^{tot}$), l'erreur statistique sur la probabilité de fission ($\sigma_{P_f}^{stat}$), l'erreur systématique sur la probabilité de fission ($\sigma_{P_f}^{syst}$). Les points correspondant à une énergie de neutrons négative sont liés à la méthode de transfert permettant de mesurer la fission sous le seuil d'énergie de liaison du neutron.

E_n (MeV)	$\sigma_{(n,f)}$ (b)	$\sigma_{\sigma_{(n,f)}}$ (%)	P_f (sans unité)	$\sigma_{P_f}^{tot}$ (%)	$\sigma_{P_f}^{stat}$ (%)	$\sigma_{P_f}^{syst}$ (%)
...						
6.0589	1.7648	6.0837	0.5931	3.4657	2.6514	2.2260
6.2739	1.7605	6.0949	0.5915	3.4853	2.6437	2.2683
6.4889	1.9219	6.0683	0.6456	3.4386	2.5405	2.3122
6.7039	1.9998	6.0350	0.6708	3.3795	2.4905	2.2833
6.9184	2.0929	6.0299	0.7010	3.3705	2.4524	2.3111
7.1334	2.2168	6.0124	0.7414	3.3391	2.4202	2.2996
7.3479	2.3479	5.9948	0.7841	3.3072	2.3895	2.2870
7.5629	2.3838	5.9781	0.7947	3.2769	2.3975	2.2335
7.7779	2.3272	5.9921	0.7747	3.3023	2.4445	2.2189
7.9929	2.4421	5.9987	0.8116	3.3143	2.4460	2.2360
8.2074	2.3911	6.0275	0.7930	3.3661	2.5251	2.2252
8.4224	2.4323	6.0574	0.8058	3.4193	2.5679	2.2533
8.6374	2.4400	6.0799	0.8073	3.4591	2.6274	2.2488
8.8519	2.3054	6.1341	0.7621	3.5536	2.7558	2.2427
9.0669	2.5321	6.1469	0.8362	3.5756	2.7546	2.2780
9.2819	2.4057	6.2229	0.7940	3.7046	2.9068	2.2845
9.4964	2.4812	6.2866	0.8185	3.8106	3.0123	2.3229
9.7114	2.5082	6.3386	0.8271	3.8959	3.1433	2.2945
9.9264	2.4125	6.4403	0.7955	4.0592	3.3455	2.2968
10.1409	2.1777	6.6169	0.7181	4.3340	3.6373	2.3564
10.3559	2.3563	6.6463	0.7770	4.3787	3.7059	2.3315

TAB. 5.10 – Résultats obtenus pour la section efficace de fission du ^{241}Am . Le tableau fournit, suivant l'énergie des neutrons (E_n), la section efficace de fission ($\sigma_{(n,f)}$), l'erreur sur la section efficace de fission ($\sigma_{\sigma_{(n,f)}}$), la probabilité de fission du ^{242}Am (P_f), l'erreur totale (statistique et systématique) sur la probabilité de fission ($\sigma_{P_f}^{tot}$), l'erreur statistique sur la probabilité de fission ($\sigma_{P_f}^{stat}$), l'erreur systématique sur la probabilité de fission ($\sigma_{P_f}^{syst}$). Les points correspondant à une énergie de neutrons négative sont liés à la méthode de transfert permettant de mesurer la fission sous le seuil d'énergie de liaison du neutron. (suite)

Bibliographie

- [Al05] I. Alhamamid et al., communication privée.
- [Ba74] B.B.Back et al., PR C vol. 9, Number 5, (may 1974)
- [Ba76] D.M.Barton et al. N.S.E. 60, 369-382 (1976)
- [Ba06] C.Bataille, C. Birraux, Rapport de l'assemblée nationale N°2159 ; une loi en 2006 sur la gestion durable des déchets radioactifs.
- [Be01] E.Bauge et al., PR C, vol.63, (2001) 024607
- [Be81] J.W.Behrens, J.C.Browne ,J,NSE,77,444,8104
- [Bi06] I.Billard, cours Joliot-Curie 2006
- [Bj80] S.Bjrnholm et J.E.Lynn, Review of Modern Physics (1980)
- [Bo98] A.Bohr et B.R.Mottelson, Nuclear Structure, World Scientific Publishishing Co. Pte, ldt.(1998)
- [Bo04] S.Boyer et al., Thèse Université Bordeaux 1
- [Bo06] S.Boyer et al., Nuclear Physics A775 (2006) 175-187
- [Bu06] J.T.Burke et al., PR C74, 054604 (2006)
- [Bu61] D.K.Butler,R.K.Sjoblom, Physical Review Vol.124, p.1129
- [Br79] H.C.Britt and J.B.Wilhelmy, NSE,72,222-229(1979)
- [Br96] Tables of radioactive isotopes, Edgardo Browne and Richard B.Firestone, Virginia S. Shirley Editor (1996)
- [Cr70] J.D.Cramer, H.C.Britt, Nucl. Sci. Eng. 41,177 (1970)
- [Da83] J.W.T.Dabbs, Nuclear Science and Engineering Vol.83, p.22
- [Da06] S.David, cours Joliot-Curie 2006
- [DEN08-1] Le combustible nucléaire,CEA, e-den, 2008, ed.LEMONITEUR
- [DEN08-2] Le traitement-recyclage du combustible usé,CEA, e-den, 2008, ed.LEMONITEUR
- [EXFOR] EXFOR, 2008, [http ://www.nndc.bnl.gov/](http://www.nndc.bnl.gov/)
- [Es06] J.E.Escher, F.S.Dietrich, PR C74, 054601 (2006)

- [Fi98] G.Fioni, H.Faust, S.Oberstedt, F-J Hambsch, Nuclear fission and fission-product spectroscopy, second international workshop, Seyssins, France 1998
- [Fo67] E.F. Fomushkin et al., *Yadernaya Fizika* Vol.5, Issue.5, p.966, 1967
- [Fo67-3] E.F.Fomushkin et al., *Soviet Journal of Nuclear Physics* vol.5, num.5 (1967)
- [Fo69] E.F.Fomushkin, E.K.Gutnikova, *Yadernaya Fizika*, Vol.10, Issue.5, p.917
- [Fo80] E.F.Fomushkin et al., *Yadernaya Fizika* Vol.31, Issue.1, p.39 (1980)
- [Fo87] E.F.Fomushkin et al., *Atomnaya Energiya* Vol.62, Issue.4, p.278 (1987)
- [Fo91] E.F.Fomushkin et al., *Conf.on Nucl.Data for Sci.and Technol.*, Juelich p.439 (1991)
- [Fu70] R.R.Fullwood et al., report : Los Alamos Scientific Lab. Reports No.4420, p.157 (1970)
- [Fu85] B.I.FURSOV et al. *Journ. : Atomnaya Energiya*, Vol.59, p.339 (1985) Russia
- [Fu97] B.I.Fursov et al., *Conf.on Nucl.Data for Sci.and Techn.*, Trieste Vol.1, p.488 (1997)
- [Ga75] A.Gavron et al., *PRL* vol.34, Number 13 (1975)
- [Ga76] A.Gavron et al., *PR C* Volume 13, Number 6, 1976
- [Ga86] A.Gandini, G.Palmiotti, M.Salvatores; Equivalent generalized perturbation theorie (EGPT), *Annals of nuclear Energy*, Vol.13,109.(1986)
- [Ga77] A.Gavron et al., *PR C*15, 6 (1977)
- [Gr05] C.Grosjean, thèse université Bordeaux 1
- [Go85] A.A.Goverdovsky et al. *Conf.on Nucl.Data f.Basic a.Appl.Sci.*, Santa Fe 1985 Vol.1, p.629
- [Gre04] Green et al. cible d' ^{243}Am
- [Ha52] W.Hausser and H. Feshbach, *PR*, Vol.87, Number 2 (1952)
- [Ha06] G.M.Hale, évaluation ENDF/B-VII.0, $^1\text{H}(n, p)$
- [Ha06] J.Hambsh, communication privée
- [Ho71] J.C.Hopkins et G.Breit, *Nuclear data tables A9*, 137-145 (1971)
- [Ho80] W.M.Howard et P.Möller, *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, Vol.25, Number 3 (1980) 219
- [Ig93] A.V.Ignatyuk et al., *PR C*, vol.47, Number 4(1993)
- [Il92] A.S.Iljinov et al., *Nuclear Physics A543* (1992) 517-557
- [JE05] Bibliothèque JENDL, $^6\text{Li}(n, \alpha)$, <http://www.nndc.bnl.gov/>
- [Ka87] Kanda et al., *J,NST,24,423,198706 Journ. : J. of Nuclear Science and Technology*, Tokyo
- [Ke05] G.Kessedjian et al., mémoire de master-2 réalisé au CENBG, 2005
- [Kn88] Knitter H.-H., Budtz-Jorgensen C. *Nucl.Sci.Eng.*, 99, 1 (1988)

- [Ko87] P.G.Koontz et al., Nuclear Cross-Sections Techn. Conf., Washington, Vol.1, p.597(D15) (1968)
- [La04] A.V.Laptev et al., Nuclear Physics, Section A Vol.734, Issue.1, p.45
- [Le94] W.R. LEO, Techniques for nuclear and particle physics experiments, p24, 1994
- [Lise] LISE programme de perte d'énergie et de simulation du GANIL
- [Li73] H.Liskien and A.Paulsen, Nuclear Data Tables 11, 569-619 (1973)
- [Li73] H.Liskien and A.Paulsen, Nuclear Data Tables, Vol 11, No. 7, 1973
- [Li98] Handbook of chemistry and physics, David R. Lide, Edito-in-Chief, 79th, p4-3 (1998)
- [Ly07] B.F.Lyles et al., PR C76, 014606 (2007)
- [MCNPX] L.Mathieu, documentation MCNPX, CENBG
- [MURE] O. Méplan et al., MURE : MCNP Utility for Reactor Evolution," ENC 2005, Versaille (France), 2005. [http ://lpsc.in2p3.fr/gpr/MURE/html/MURE/MURE.html](http://lpsc.in2p3.fr/gpr/MURE/html/MURE/MURE.html)
- [Mo71] M.S.Moore et al. PR C vol 3, number 4, p1656, 1971
- [Mo95] P.Möller et J.R.Nix, Atomic Data and Nuclear Data Tables, Vol.59, Number 2, 185 (1995) 185
- [NEA06] Physics and Safety of Transmutation Systems,A Status Report, OECD 2006, NEA No. 6090
- [NNDC08] National Nuclear Data Center 2008, [http ://www.nndc.bnl.gov/](http://www.nndc.bnl.gov/)
- [Pe04] M. Petit et al., Nuclear Physics A735 (2004) 345-371
- [Pe02] M. Petit et al., Thèse Université Bordeaux 1
- [Pl05] C.Plettner et al., PR C71, 05602(R) (2005)
- [Sa08] M. Salvatores et al., International Evaluation Collaboration, Vol 26, "Uncertainty and target accuracy assessment for inovative systems using recent covariance data evaluations", NEA No 6410, OECD 2008, ISBN 978-92-64-99053-1 [http ://www.nea.fr/html/science/wpec/volume26/volume26.pdf](http://www.nea.fr/html/science/wpec/volume26/volume26.pdf)
- [Si76] M.G.Silbert et al., report : Los Alamos Scientific Lab. Reports No.6239, p.MS (1976)
- [Sp70] D.L.Shpak,B.I.Fursov,G.N.Smirenkin, Yadernaya Fizika, Vol.12, Issue.1, p.35
- [Sw77] D.W. Sweet, "Actinide Fission Rate Measurements in ZEBRA", AEEW-R-1190, U.K. Atomic Energy Establishment, Winfrith (1977)
- [Ta05] P.Talou et al. Nuclear data needs for generation IV nuclear energy systems, Antwerpen, Belgium 5 - 7 April 2005
- [Ta07] P.Talou, T.Kawano, P.G.Young, R.E.MacFarlane, and M.B.Chadwick, Los Alamos report LA-UR-06-0318, NSE Volume 155, Number 1, January 2007, Pages 84-95

- [Va06] F.Varaine, cours Joliot-Curie 2006
- [Vi85] V.E.Viola PR C 31 (1985) 1550
- [Vo81] P.E.Vorotnikov et al., Atomnaya Energiya Vol.57, Issue.1, p.61 (1981)
- [Vo84] P.E.Vorotnikov et al., Yadernaya Fizika Vol.40, Issue.5, p.1141, 1984
- [Wi83] K.Wisshak,F.Kaeppler, Nuclear Science and Engineering, Vol.85, p.251 (1983)
- [Ya99] V.Ya,Golovnya, V.P.Bozhko, S.N.Oleynik, V.P.Shpakov,V.A.Kalinin, Conf.Rep. : Joint
Inst. for Nucl. Res., Dubna Reports No.419, p.293
- [Yo03] W.Younes et H.C.Britt 2003 PR C 68, 034610 (2003)
- [Yo03-2] W.Younes et H.C.Britt, PR C 67, 024610 (2003)
- [Yo04] W.Younes et al., rapport interne du LANL, USA, communication privée

Table des figures

1.1	Carte des isotopes produits dans un réacteur dans la région des actinides.	9
1.2	Evolution de la radiotoxicité du combustible usé par groupes de déchets nucléaires [NEA06]. La référence est fixée par la radiotoxicité associée à la fabrication d'une tonne d'uranium enrichi.	13
1.3	Sections efficaces de fission induites par neutrons rapides des principaux actinides présents dans les réacteurs REP (données NNDC - EXFOR) [EXFOR].	22
2.1	Section efficace de réaction induite par neutrons ${}^6\text{Li}(n, \alpha)$, ${}^{10}\text{B}(n, \alpha_0)$ et ${}^{10}\text{B}(n, \alpha_1)$ [NNDC08].	28
2.2	Sections efficaces évaluées de fission des trois principales bibliothèques : ${}^{235}\text{U}(n, f)$, ${}^{238}\text{U}(n, f)$ et ${}^{239}\text{Pu}(n, f)$ [NNDC08].	29
2.3	Section efficace évaluée de diffusion élastique ${}^1\text{H}(n, p)$ [NNDC08].	29
2.4	Sections efficaces de fission induites par neutrons de noyaux fertiles : ${}^{232}\text{Th}(n, f)$, ${}^{237}\text{Np}(n, f)$, ${}^{238}\text{U}(n, f)$ et ${}^{243}\text{Am}(n, f)$ [NNDC08].	31
2.5	Données sur $l^{243}\text{Am}(n, f)$ présentes dans la base EXFOR au niveau des neutrons rapides [Ta05] [Ta07].	32
2.6	Schéma cinématique de la diffusion élastique (n, p)	34
2.7	a) compteur proportionnel - spectre de protons diffusés en fonction de l'énergie des protons. b) {film mince hydrogéné + détecteur à 0° } - spectre de protons diffusés en fonction de l'énergie des protons. Pour les deux dispositifs, le spectre théorique des protons (courbe en noir) est dégradé par la résolution expérimentale du dispositif (courbe en rouge).	36
2.8	Section efficace de fission induite par neutrons ${}^{242}\text{Cm}(n, f)$ [NNDC08].	41
2.9	Section efficace de fission induite par neutrons ${}^{243}\text{Cm}(n, f)$ [NNDC08].	42
2.10	Section efficace de fission induite par neutrons ${}^{244}\text{Cm}(n, f)$ [NNDC08].	43
2.11	Principe de la méthode de substitution : l'objectif est de former le noyau $(A+1)$ par une réaction de transfert du type ${}^A Y(\text{projectile}, \text{ejectile})^{A+1} X$. La détection et l'identification de l'éjectile et la mesure de son énergie signent le noyau formé et son énergie d'excitation.	45

2.12	Figure de gauche : distribution des moments transférés l (à 90° et $E^* = 5,5\text{MeV}$) en fonction des réactions de transfert (t,p) , (d,p) , et $(^3\text{He},d)$ [Ba74].	51
2.13	Probabilité de fission évaluée de $l^{236}\text{U} + n$ en fonction de l'énergie d'excitation pour chaque valeur de spin-parité (J^π) peuplée [Yo03-2]. On constate que la sélectivité en moment angulaire s'estompe au-delà de $E_n=1\text{ MeV}$ ($E^* \approx B_n + E_n$).	52
2.14	Section efficace de fission de $l^{236}\text{U}$ [Ly07]. Le graphique (a) montre les résultats obtenus par la méthode "absolue" en comparaison à l'évaluation ENDF/B-VII : $^{238}\text{U}(^3\text{He},\alpha f)^{237}\text{U}$ (cf.eq.2.21 & 2.22). Le graphique (b) présente la même section efficace obtenue par la méthode "ratio" en référence à la même évaluation : $\frac{^{238}\text{U}(^3\text{He},\alpha f)^{237}\text{U}}{^{235}\text{U}(^3\text{He},\alpha f)^{234}\text{U}} \cdot \sigma_{(n,f)}^{233\text{U}}$.	53
2.15	Réactions de transfert sur $l^{243}\text{Am}$ produisant les noyaux de $^{243,244,245}\text{Cm}$ et $d^{242}\text{Am}$. Les probabilités de fission permettent de déduire les sections efficaces de réaction de fission induite par neutrons sur les $^{242,243,244}\text{Cm}$ et sur $l^{241}\text{Am}$.	55
2.16	Schéma cinématique des réactions de transfert.	55
2.17	Schéma de principe du dispositif de mesures par réactions de transfert.	57
3.1	schémas de principe de la cible solide (a) et des cibles gazeuses (b)	60
3.2	Sections efficaces différentielles à 0° pour les réactions $T(p,n)^3\text{He}$ et $D(d,n)^3\text{He}$ [Li73].	62
3.3	Spectrométries α des cibles $d^{243}\text{Am}$: de gauche à droite, les particules α de $l^{243}\text{Am}$, du ^{249}Cf et du ^{252}Cf . Le dernier pic provient d'un générateur d'impulsion pour mesurer le temps mort.	64
3.4	Schéma du dispositif expérimental.	66
3.5	Schéma coté du dispositif expérimental.	68
3.6	Spectres de fragments de fission mesurés par les quatre cellules photovoltaïques.	70
3.7	Efficacité des détecteurs de fragments de fission : les points bleus présentent l'efficacité cinématique des détecteurs pour une émission isotrope des fragments de fission ; les points rouges correspondent à une émission anisotrope des fragments de fission ($W(0^\circ)/W(90^\circ)=1,1$). Les barres d'erreurs présentées reflètent les incertitudes géométriques sur les détecteurs de fragments de fission.	71
3.8	Diagramme bidimensionnel donné par le télescope : perte d'énergie (ΔE) en fonction de l'énergie résiduelle (E_{res}) pour des neutrons de $E_n = 7,9\text{ MeV}$. L'hyperbole correspond à la trace des protons dans le télescope ; les droites correspondent aux réactions parasites dans le télescope.	73

3.9	<i>Ed=3MeV ; En=5,72 MeV - (a) Spectres de protons diffusés direct (PPon) et de bruit de fond (PPoff). (b) Spectre de protons diffusés par des neutrons quasi-mono-énergétiques après soustraction du bruit de fond.</i>	74
3.10	<i>Ed = 3MeV ; En = 5.72MeV -a) Flux de neutrons donné par la simulation. -b) Spectres de protons expérimental et simulé</i>	75
3.11	<i>Ed=2,5MeV ; En=5,12 MeV - a) Spectres de protons diffusés : mesure directe (PPon), mesure de bruit de fond du télescope (PPoff), mesure de bruit de fond de la source de neutrons (cible gazeuse sans deutérium). Le bruit de fond neutrons représente $\sim 0,6\%$ de la mesure directe (PPon).</i>	77
3.12	<i>Ed=3 MeV ; En =5.72 MeV - Comparaison entre l'expérience, notre simulation et la simulation MCNPX.</i>	78
3.13	<i>a) - Simulation MCNPX du spectre de neutrons incidents au film de polypropylène. La courbe bleu indique le taux de réaction quel que soit l'angle d'incidence. b) - La courbe en noir sélectionne uniquement les réactions pour des neutrons arrivant sur le film de polypropylène avec un angle inférieur à 8°.</i>	79
3.14	<i>Efficacités de détection des protons de recul en fonction de l'énergie des neutrons - comparaison avec le cas isotrope (efficacité de $1,00(\pm 0,09)\%$ quelle que soit l'énergie des neutrons).</i>	81
3.15	<i>Dispositif expérimental des mesures de section efficace de fission de $l^{243}\text{Am}$ en référence à la section efficace de fission de $l^{238}\text{Am}$.</i>	97
3.16	<i>Mesures de la section efficace de fission de $l^{243}\text{Am}$ obtenues pour chacune des cibles (Am1 et Am2).</i>	100
3.17	<i>Section efficace de fission de $l^{243}\text{Am}$: nos mesures sont comparées à celles de H.H.Knitteret al., A.Laptev et al. et l'évaluation de la bibliothèque ENDF.</i>	105
3.18	<i>La figure compare les données renormalisées de A.Laptev et al. à nos mesures : l'écart systématique déterminé par la méthode des moindres carrées est de $12,8\%$ ($\chi^2 = 0.98$).</i>	106
3.19	<i>Matrice de corrélations d'erreurs de la mesure de section efficace de fission de $l^{243}\text{Am}$ en référence à la diffusion (n,p) pour des corrélations nulles des angles solides, correspondant aux maxima des écarts types de la section efficace de fission.</i>	109
3.20	<i>Matrice de corrélations d'erreurs de la mesure de section efficace de fission de $l^{243}\text{Am}$ en référence à la diffusion (n,p) pour des corrélations maximales des angles solides, correspondant aux minima des écarts types de la section efficace de fission.</i>	111
3.21	<i>Valeurs singulières des deux matrices de corrélations d'erreurs des mesures de sections efficaces de fission de $l^{243}\text{Am}$.</i>	112

3.22	Résultats sur la section efficace de fission de $l^{243}\text{Am}$ en comparaison aux évaluations des bibliothèques ENDF et JENDL.	116
3.23	Matrice de corrélations d'erreurs de l'ensemble des mesures de la section efficace de fission de $l^{243}\text{Am}$ réalisées en référence à la diffusion élastique (n,p) et aux sections efficaces de fission de $l^{238}\text{U}$ et de $l^{235}\text{U}$	118
3.24	Matrice de corrélations d'erreurs de l'ensemble des mesures de la section efficace de fission de $l^{243}\text{Am}$ réalisées en référence à la diffusion élastique (n,p) et aux sections efficaces de fission de $l^{238}\text{U}$ et de $l^{235}\text{U}$ (corrélations des angles solides nulles).	119
3.25	Schéma des voies de désexcitation traitées par le programme d'évaluation.	122
3.26	Section efficace de fission de $l^{243}\text{Am}$ calculée en comparaison aux résultats expérimentaux.	129
3.27	Evaluation des sections efficaces inélastique (en rouge) et de capture (en noir) de $l^{243}\text{Am}$ dans le domaine des neutrons rapides $[0,01;10]\text{MeV}$. Cette dernière section efficace est comparée aux données expérimentales de K.Wisshak et al. [Wi83]. Les courbes en vert présentent les sections efficaces inélastiques partielles pour quatre états résiduels de $l^{243}\text{Am}$	130
4.1	Spectrométrie α de la cible d' $l^{243}\text{Am}$: de gauche à droite, les particules α de $l^{243}\text{Am}$, du ^{241}Am et du ^{244}Cm	134
4.2	Dispositif expérimental : le faisceau d' ^3He arrive par la gauche pour interagir avec une cible (active ou inerte). En bout de ligne, une cage de faraday mesure la charge déposée afin de normaliser les mesures de bruit de fond.	135
4.3	Détecteurs de particules chargées (télescopes Si à gauche) et de fragments de fission (cellules photovoltaïques placées sur un cylindre).	136
4.4	Etalonnage des télescopes par deux réactions sur le ^{208}Pb pour former les états excités du ^{209}Bi et du ^{207}Pb	140
4.5	Perte d'énergie (ΔE) en fonction de l'énergie résiduelle. On discerne parfaitement les cinq hyperboles correspondant (de bas en haut) aux protons, deutons, tritons, ^3He et α	142
4.6	Spectres de particules (p, d, t, et α) en fonction de l'énergie d'excitation.	143
4.7	Spectres de particules (p, d, t, et α) en fonction de l'énergie d'excitation du noyau formé, respectivement, les $^{245}\text{Cm}^*$, $^{244}\text{Cm}^*$, $^{243}\text{Cm}^*$ et $^{242}\text{Am}^*$. Les cercles noirs représentent le nombre de noyaux identifiés par énergie d'excitation; les carrés bleus correspondent au nombre de noyaux lourds formés en coïncidence avec un ou deux fragments de fission (télescope à 130°).	144

4.8	Spectres de coïncidence en temps entre le télescope et le détecteur de fragments de fission pour les voies d, t, et α sur une fenêtre en temps de 380 ns (télescope 3 - 130°).	145
4.9	Spectres de particules avant et après soustraction du bruit de fond dû aux $^{12,13}\text{C}$ pour les quatre voies de réaction p, d, t, α (télescope 3 - 130°). La comparaison des spectres de particules bruts et ceux soustraits du bruit de fond (vert) montrent parfaitement les structures venant du ^{12}C et de ^{16}O provenant du dépôt d' AmO_2	146
4.10	Spectre des ^3He diffusés sur les cibles d' ^{243}Am , de ^{12}C et de mylar. Pour le mylar, la largeur des pics est liée à l'épaisseur du film utilisé (2,5 μm).	147
4.11	Spectres de particules corrigés pour les quatre voies de réaction p, d, t, α (télescope 3 - 130°).	149
4.12	Efficacité géométrique de détection de fission (pour un seul fragment).	151
	152	
4.14	Efficacité cinématique de détection de fragments de fission en fonction de l'énergie d'excitation et du facteur d'anisotropie pour la voie triton (télescope 3 - 130° - haut).	152
4.15	Probabilités de fission obtenues dans les voies proton et deuton : à gauche, les mesures obtenues dans ce travail ; à droite les mesures de A.Gavron et al. [Ga76] (télescopes 1 et 2 à 90° ; télescopes 3 et 4 à 130°).	154
4.16	Probabilités de fission obtenues dans les voies triton et α : à gauche, les mesures obtenues dans ce travail ; à droite les mesures de A.Gavron et al. [Ga76] (télescopes 1 et 2 à 90° ; télescopes 3 et 4 à 130°).	155
4.17	Les résultats sur les probabilités de fission moyennes des $^{243,244}\text{Cm}$ sont présentés avec leur matrice de corrélation d'erreurs.	157
4.18	Les résultats sur la probabilité de fission moyenne de $^{241}\text{Am}(n, f)$ est présenté avec leur matrice de corrélation d'erreurs.	158
4.19	Graphe(a) : Comparaison des sections efficaces totales calculées aux mesures existantes. Les courbes en pointillés représentent une variation de 5% du calcul réalisé à Bruyères-Le-Châtel. Graphe(b) : sections efficaces totale, élastique, inélastique et de noyau composé de la réaction $^{241}\text{Am} + n$	159
4.20	Section efficace de fission induite par neutrons $^{241}\text{Am}(n, f)$	160
4.21	Sections efficaces de fission des $^{242,243}\text{Cm}$. Nos mesures sont comparées aux évaluations et données présentées au chapitre 2.	161
4.22	Sections efficaces de fission des isotopes fissiles $^{243,245,247}\text{Cm}$	162

Liste des tableaux

1.1	Composition des principaux isotopes du combustible avant et après irradiation de combustible UOX (enrichi en ^{235}U à 3,5%) dans un réacteur REP de 900MWe, pour un taux de combustion (burn-up) de 33GWj/t [Fi98]	10
1.2	Inventaire en actinides pour les combustibles UOX et MOX normalisé à une même puissance de fonctionnement (55GWj/t) après un refroidissement de 5 ans [DEN08-1].	11
1.3	Origines et destinations des déchets nucléaires en France [Ba06]	14
1.4	Gestion du combustible usé - retraitement partiel en attente de solutions définitives [Da06].	15
1.5	Inventaire des déchets radioactifs en France au 31 décembre 2002, quelles que soient leurs origines [Ba06].	16
1.6	Rapport α ($= \frac{\text{taux de capture}}{\text{taux de fission}}$) en fonction du spectre de neutrons [Va06].	19
1.7	Nombre de séries de mesures et nombre de points de mesures sélectionnés pour les évaluations dans le domaine des neutrons rapides [0,1 ; 20] MeV [NNDC08] [Sa08].	20
2.1	Erreurs sur les sections efficaces de référence évaluées fournies par les bibliothèques (ENDF, JENDL, JEFF) [NNDC08].	30
2.2	Mesures de la section efficace de fission de $l^{243}\text{Am}$ présentes sur EXFOR (2008) [NNDC08]	33
3.1	Chaleurs de réactions et seuils d'ouverture des différentes réactions d'intérêts et parasites.	63
3.2	Plage de production de neutrons quasi-monoénergétiques en fonction des différentes cibles de deutérium ou de tritium [Ha06] [Gr05].	63
3.3	Caractéristiques des cibles d' ^{243}Am	65
3.4	Paramètres de la mesure de section efficace de fission de $l^{243}\text{Am}$ avec leur erreur associée.	69

3.5	Tableau des libres parcours moyens λ des neutrons d'énergie $0,5 \text{ MeV} < E_n < 20 \text{ MeV}$ par rapport aux épaisseurs des matériaux présents dans l'enceinte à vide et la source de neutrons.	75
3.6	Tableau des corrélations et des sensibilités des paramètres de la section efficace de fission de ^{243}Am	88
3.7	Tableau des sensibilités (S) en fonction des énergies de neutrons (E_n).	91
3.8	Tableau regroupant les taux de comptage et leurs erreurs associées pour les différentes mesures en énergie de neutrons (E_n). A noter que $\sigma\left(\frac{N_f}{N_p}\right)/\left(\frac{N_f}{N_p}\right)$ représente l'erreur statistique de la section efficace de fission à l'énergie E_n	92
3.9	Erreurs sur la section efficace de diffusion élastique (n,p). Dans ce tableau $< E_n >$ est l'énergie moyenne du flux de neutrons, ΔE_n la résolution en énergie de la mesure, ΔE_n^{sys} l'erreur systématique sur la mesure.	93
3.10	Tableau de propagation des erreurs sur les paramètres de la section efficace de fission de ^{243}Am entre les différentes séries de mesures.	94
3.11	Nombre de fragments de fission détectés pour les cibles d' ^{238}U et d' ^{243}Am	98
3.12	Paramètres de la série de mesures de la section efficace de fission de ^{243}Am en référence à ^{238}U	99
3.13	Nombre de fragments de fission détectés pour les cibles d' ^{235}U et d' ^{243}Am	99
3.14	Tableau des variances-covariances relatif aux angles solides $\Omega_{n-\text{Am}}$ et $\Omega_{n-\text{pp}}$ pour les différentes séries de mesures. L'erreur sur le rapport des angles solides est donnée sous forme d'intervalle en tenant compte ou non du terme de covariance des angles solides $\Omega_{n-\text{Am}}$ et $\Omega_{n-\text{pp}}$	101
3.15	Mesures, en fonction de l'énergie des neutrons, de la section efficace de fission pour chacune des cibles (colonnes 4 & 5), avec leur erreur relative (colonnes 6 & 7) et la corrélation des erreurs entre les deux mesures (colonne 8) . Les résultats sont présentés par séries de mesures. Les erreurs relatives des mesures de la section efficace de fission sont données sous forme d'intervalles (en fonction de la covariance des angles solides $\Omega_{n-\text{Am}}$ et $\Omega_{n-\text{pp}}$).	102
3.16	Mesures réalisées de la section efficace de la réaction $^{243}\text{Am}(n, f)$ en fonction de l'énergie des neutrons. Ces résultats sont présentés par séries (sites de mesures et méthodes de production des neutrons).	105
3.17	Valeurs singulières des deux matrices de corrélations des erreurs pour les extrêmes des covariances des angles solides ($< \text{corr} >; \text{corr}(\Omega_n; \Omega_2) = (0,00; 0,00)$ ou $(0,61; 1,0)$).	113
3.18	Vecteurs singuliers des principales valeurs singulières pour les deux matrices de corrélations des erreurs. La lettre T ou D indique que les mesures ont été réalisées avec une cible de tritium ou de deutérium.	114

3.19	Mesures, en fonction de l'énergie des neutrons, de la section efficace de fission moyenne. Les résultats sont présentés par séries de mesures; les erreurs sont indiquées pour les deux valeurs limites des corrélations des angles solides.	115
3.20	Mesures en fonction de l'énergie des neutrons de la section efficace de fission de ^{243}Am en référence à la section efficace de fission de ^{238}U . Les erreurs statistiques ($\sigma(\sigma_{(n,f)}^{243\text{Am}})^{\text{stat}}$) et les erreurs totales $\sigma(\sigma_{(n,f)}^{243\text{Am}})$ sont indiquées pour chaque mesure. L'erreur $\sigma(\sigma_{(n,f)}^{243\text{Am}})$, donnée sous forme d'intervalle, informe sur l'importance du terme de covariance des angles solides	117
3.21	Mesures en fonction de l'énergie des neutrons de la section efficace de fission de ^{243}Am en référence à la section efficace de fission de ^{235}U (ENDF/BVII.0) réalisées sur le Van de Graaf du CENBG [Ke05].	117
3.22	Correction de pairing en fonction de la déformation (β_2) pour les noyaux $d^{243}\text{Am}$ et ^{244}Am	128
3.23	Correction de couches $\Delta S_{A/B}$ en fonction de la déformation (β_2) pour les noyaux $d^{243}\text{Am}$ et ^{244}Am	128
3.24	Barrières de fission A et B obtenues par notre calcul pour les noyaux $d^{243}\text{Am}$ et ^{244}Am en comparaison à la systématique établie par S.Bjornholm et J.E.Lynn [Bj80].	128
4.1	Caractéristiques de la cible $d^{243}\text{Am}$ sur support mince de carbone ($75\mu\text{g}/\text{cm}^2$). .	134
4.2	Paramètres du dispositif "transfert".	137
4.3	Etats excités des noyaux de ^{209}Bi et ^{207}Pb utilisés pour étalonner les télescopes. .	139
4.4	Erreur associée à l'énergie d'excitation (E^*) pour la voie deuton ($^{243}\text{Am}(^3\text{He}, d)^{244}\text{Cm}^*$) pour les deux angles de détection (90° et 130°) en fonction de l'énergie des deutons éjectés.	141
4.5	Réactions de transfert sur les principaux éléments légers pouvant être dans la cible $d^{243}\text{Am}$. Le tableau indique la position des pics (état fondamental du noyau formé) sur les spectres de particules en fonction de l'énergie d'excitation du noyau fissionnant.	148
5.1	Caractéristiques des principaux actinides présents dans le combustible usé.	171
5.2	Erreur sur le taux de fission normalisé $\langle F/\Omega \rangle$ avec et sans corrélation (colonne 3 & 4). Les valeurs de la fonction de corrélation (f_c) (en $(\%)^2$) (colonne 5). Dans notre cas, la corrélation des angles solides Ω_1 et Ω_2 n'est pas toujours perturbative suivant les valeurs prises par le terme de covariance $\text{Cov}(\Omega_1; \Omega_2)$ (cf.eq.5.13). Les deux dernières colonnes présentent les erreurs systématiques	77 177
5.3	Tableau de corrélations et des sensibilités des paramètres de la section efficace de fission moyenne de ^{243}Am	179

5.4	Matrices de covariances des paramètres des taux de fission normalisés $\langle F/\Omega \rangle_i$ et $\langle F/\Omega \rangle_j$	182
5.5	Matrices de covariances et de sensibilités des paramètres de la probabilité de fission moyenne $\langle P_f^x \rangle$	191
5.6	Résultats obtenus pour la section efficace de fission du ^{243}Cm . Le tableau fournit, suivant l'énergie des neutrons (E_n), la section efficace de fission ($\sigma_{\sigma_{(n,f)}}$), l'erreur sur la section efficace de fission ($\sigma_{\sigma_{(n,f)}}$), la probabilité de fission du ^{244}Cm (P_f), l'erreur totale (statistique et systématique) sur la probabilité de fission ($\sigma_{P_f}^{\text{tot}}$), l'erreur statistique sur la probabilité de fission ($\sigma_{P_f}^{\text{stat}}$), l'erreur systématique sur la probabilité de fission ($\sigma_{P_f}^{\text{syst}}$). Les points correspondant à une énergie de neutrons négative sont liés à la méthode de transfert permettant de mesurer la fission sous le seuil d'énergie de liaison du neutron.	195
5.7	Résultats obtenus pour la section efficace de fission du ^{243}Cm . Le tableau fournit, suivant l'énergie des neutrons (E_n), la section efficace de fission ($\sigma_{\sigma_{(n,f)}}$), l'erreur sur la section efficace de fission ($\sigma_{\sigma_{(n,f)}}$), la probabilité de fission du ^{244}Cm (P_f), l'erreur totale (statistique et systématique) sur la probabilité de fission ($\sigma_{P_f}^{\text{tot}}$), l'erreur statistique sur la probabilité de fission ($\sigma_{P_f}^{\text{stat}}$), l'erreur systématique sur la probabilité de fission ($\sigma_{P_f}^{\text{syst}}$). Les points correspondant à une énergie de neutrons négative sont liés à la méthode de transfert permettant de mesurer la fission sous le seuil d'énergie de liaison du neutron.(suite)	196
5.8	Résultats obtenus pour la section efficace de fission du ^{242}Cm . Le tableau fournit, suivant l'énergie des neutrons (E_n), la section efficace de fission ($\sigma_{\sigma_{(n,f)}}$), l'erreur sur la section efficace de fission ($\sigma_{\sigma_{(n,f)}}$), la probabilité de fission du ^{243}Cm (P_f), l'erreur totale (statistique et systématique) sur la probabilité de fission ($\sigma_{P_f}^{\text{tot}}$), l'erreur statistique sur la probabilité de fission ($\sigma_{P_f}^{\text{stat}}$), l'erreur systématique sur la probabilité de fission ($\sigma_{P_f}^{\text{syst}}$). Les points correspondant à une énergie de neutrons négative sont liés à la méthode de transfert permettant de mesurer la fission sous le seuil d'énergie de liaison du neutron.	197
5.9	Résultats obtenus pour la section efficace de fission du ^{241}Am . Le tableau fournit, suivant l'énergie des neutrons (E_n), la section efficace de fission ($\sigma_{\sigma_{(n,f)}}$), l'erreur sur la section efficace de fission ($\sigma_{\sigma_{(n,f)}}$), la probabilité de fission du ^{242}Am (P_f), l'erreur totale (statistique et systématique) sur la probabilité de fission ($\sigma_{P_f}^{\text{tot}}$), l'erreur statistique sur la probabilité de fission ($\sigma_{P_f}^{\text{stat}}$), l'erreur systématique sur la probabilité de fission ($\sigma_{P_f}^{\text{syst}}$). Les points correspondant à une énergie de neutrons négative sont liés à la méthode de transfert permettant de mesurer la fission sous le seuil d'énergie de liaison du neutron.	198

5.10 Résultats obtenus pour la section efficace de fission du ^{241}Am . Le tableau fournit, suivant l'énergie des neutrons (E_n), la section efficace de fission ($\sigma_{\sigma_{(n,f)}}$), l'erreur sur la section efficace de fission ($\sigma_{\sigma_{(n,f)}}$), la probabilité de fission du ^{242}Am (P_f), l'erreur totale (statistique et systématique) sur la probabilité de fission ($\sigma_{P_f}^{\text{tot}}$), l'erreur statistique sur la probabilité de fission ($\sigma_{P_f}^{\text{stat}}$), l'erreur systématique sur la probabilité de fission ($\sigma_{P_f}^{\text{syst}}$). Les points correspondant à une énergie de neutrons négative sont liés à la méthode de transfert permettant de mesurer la fission sous le seuil d'énergie de liaison du neutron.(suite)	199
---	-----

